



Effets hydrauliques d'une injection de CO₂ en réservoir souterrain : Mise au point de méthodes géophysiques de surface permettant de suivre ces effets

Simon Contraires

► To cite this version:

Simon Contraires. Effets hydrauliques d'une injection de CO₂ en réservoir souterrain : Mise au point de méthodes géophysiques de surface permettant de suivre ces effets. Géophysique [physics.geo-ph]. Institut de physique du globe de paris - IGP, 2008. Français. NNT : . tel-00577680

HAL Id: tel-00577680

<https://theses.hal.science/tel-00577680>

Submitted on 17 Mar 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Centre de Recherches IPGP Schlumberger TOTAL sur le Stockage Géologique du CO_2
Institut de Physique du Globe de Paris
Cofinancement ADEME/TOTAL

THÈSE

présentée et soutenue publiquement
pour l'obtention du diplôme de

Docteur de l'Institut de Physique du Globe de Paris.
Spécialité Géophysique

par

Simon Contraires

le vendredi 7 novembre 2008

**Effets hydrauliques d'une injection de CO_2
en réservoir souterrain :**

**Mise au point de méthodes géophysiques de surface
permettant de suivre ces effets**

devant le jury constitué de :

Alain Bonneville, Physicien, IPGP, Paris	Président & Examineur
Philippe Cosenza, Maître de Conférences, UPMC, Paris 6	Rapporteur
Jean-Pierre Gratier, Physicien d'Observatoire, UJF, Grenoble	Rapporteur
Bénédicte Ménez, Chargée de recherche, IPGP, Paris	Examinatrice
Nathalie Thybaud, Ingénieur, ADEME, Angers	Examinatrice
Maria Zamora, Professeur, IPGP, Paris	Directrice de Thèse

Résumé

L'objectif de cette thèse est de déterminer expérimentalement les effets des réactions de dissolution/précipitation de la calcite ($CaCO_3$) en milieux poreux sur les observables géophysiques, à différentes échelles. Elle s'inscrit dans le cadre de la recherche sur le stockage géologique du dioxyde de carbone (CO_2). La première partie est consacrée à la conception et la réalisation d'expériences de percolation réactive de fluide riche en CO_2 sur des échantillons décimétriques de carbonates, avec suivi en temps réel de la conductivité électrique de la roche et du fluide, du pH du fluide, de la perméabilité de la roche, mesures ponctuelles au cours des expériences de l'alcalinité et de la composition du fluide, et acquisition de profils de vitesses et d'atténuation des ondes sismiques le long de l'échantillon. Ceci, associé à une caractérisation quantitative des échantillons avant et après expérience à différentes échelles, a permis de montrer que l'évolution de la porosité dans les échantillons déterminée par les méthodes électriques et sismiques est en très bonne adéquation avec celle obtenue par la composition des prélèvements chimiques en sortie d'échantillon. À plus grande échelle, nous avons conçu et assemblé une cuve cylindrique, équipée pour effectuer des tomographies de résistivité électrique (ERT) 3D, et pour un suivi par Potentiel Spontané (PS) en surface. Le but de ce dispositif est de réaliser des expériences de précipitation de calcite en milieu granulaire (sable de Fontainebleau), avec un suivi géoélectrique des injections et de l'évolution de la porosité. Les développements expérimentaux, logiciels et tests présentés ont permis de rendre ce dispositif opérationnel pour l'imagerie géoélectrique d'expériences de percolation réactive. Enfin, sur le terrain, nous avons effectué une campagne d'acquisition multi-paramètres autour de la source chaude de Syabru-Bensi, au Népal, sous la direction de Frédéric Perrier. Cette mission a consisté en la cartographie multi-méthodes du sous-sol d'un site comprenant une source d'eau chaude et un fort dégagement gazeux, avec notamment d'importantes concentrations de CO_2 , en faisant un analogue naturel de fuite lors d'un stockage géologique. Un objectif de cette étude est la compréhension de cette zone complexe, du couplage entre les différents phénomènes observés pour comprendre l'origine et le chemin permettant à ces quantités de gaz de parvenir en surface. s'agit également de déterminer la contribution de cette zone au bilan de carbone régional, et d'utiliser ce site pour déterminer la possibilité d'employer la mesure du flux de radon au sol comme précurseur sismique, pour la prédiction du futur grand séisme Himalayen.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier très chaleureusement les deux rapporteurs de ce travail, Philippe Cosenza et Jean-Pierre Gratier. Ils ont en effet accepté de lire en détail mon manuscrit et de rédiger leur rapport en un temps record. Ces remerciements sont à partager avec les autres membres du jury, dont les examinatrices, Bénédicte Ménez et Nathalie Thybaud. Les remarques et critiques constructives du jury sur mon travail ont entraîné des doutes et réflexions qui ne pourront qu'être bénéfiques pour la suite de ce projet de recherches. Enfin, les deux autres membres du jury sont ceux qui m'ont confié ce travail il y a quatre ans, qui m'ont fait confiance, guidé, orienté, conseillé et soutenu, soit ma directrice de thèse Maria Zamora, et le directeur du programme CO_2 , Alain Bonneville. Merci beaucoup ! De plus, outre l'encadrement de thèse stricto sensu durant ces années, Maria m'a permis de participer à des écoles d'été, congrès et campagnes de terrain dans des destinations éloignées et attirantes, ce qui m'a permis d'apprendre, de découvrir, de rencontrer des collègues dans des cadres agréables, et de revenir au laboratoire avec de la motivation plein les valises, des idées nouvelles et un enthousiasme à toute épreuve. Il me faut également adresser une place particulière dans ces remerciements à Alexis Mainault pour son soutien efficace et précieux dans les moments cruciaux, ainsi que pour les plages d'humour noir à la cantine et au café après les festins quotidiens.

Ces années de recherche expérimentale m'ont permis d'apprendre énormément, principalement par la méthode d'essais-erreur (que je suis fier de partager avec Karl Popper et les rats du Palais de la Découverte chers à ma filleule Rachel). Le fait de mener des expériences de bout en bout, depuis les phases de conception, la fabrication des éléments, le montage, la connexion des différents composants, la programmation de l'acquisition, jusqu'aux premiers tests, aux bricolages et bidouillages en tous genres, à la résolution de problème à coups de scotch magique, de joint de bonde, de silicone, de téflon et autres matériaux merveilleux issus de la conquête spatiale pour finalement atterrir dans nos tiroirs via les rayons du BHV, aura été un d'une grande valeur au moment de valoriser cette formation à la recherche par la recherche. Ces phases de développement expérimental et de conduite de manipulation ont été menées en équipe, avec tout d'abord, bien sûr, ma binôme Stéphanie Vialle. Son expertise, son sérieux et sa gentillesse m'ont permis de garder le cap quand mon tempérament fou-fou aurait pu me laisser m'égarer. Merci à toi ! Il me faut également citer la compétence, le savoir faire et la disponibilité de Karim Mahiouz. Les souvenirs agréables en sa compagnie foisonnent, tant dans le cadre professionnel (au Mayet avec Michel, ou à percer de l'inox (oups encore un foret), à polir, à porter, à trouer, à fixer, à coller, à assembler tout un tas de choses ensemble, à tamiser et à s'amuser), qu'à côté (souvenirs

embrumés de rhums arrangés sur des Dunes ensoleillées de soucsou parfumé). Merci également aux deux Marc, de Rafélis et Pessel, pour leur collaboration à ce travail de thèse, leur expertise et leur gentillesse.

De nombreuses personnes ont partagé mon bureau ou les bureaux mitoyens pendant ces années, contribuant à l'ambiance, tantôt studieuse, tantôt festive de mes journées, me distillant conseils scientifiques et techniques, blagues d'un goût très sûr, potins de laboratoire, avis rugbystiques, etc. Dans le désordre merci donc à Olivier Lopez le parisien et Fabien Dufaud le toulousain, que j'ai eu la joie d'accompagner pendant leur fin de thèse ainsi qu'au stade pour les voir l'un après l'autre s'incliner contre Biarritz, merci ! Merci également à Adam Gosselet, Nelly Assayag, Stéphane Lafortune, Aurélie Feld, Fernand Lopes, Svetlana Byrdina, Nolwenn Lesparre, Alessandro Scislewski, Cristian Vieira, Jérôme Wassermann et bien sûr à Sophie Giancesini, amie et soutien précieux de ma fin de thèse (et on sait bien comme ça peut être long une fin de thèse). Je n'oublie pas non plus les voisins, Benjamin Cochain, Anne Choulet, et Eozen Strukelj. Un grand merci également à Joël Dyon (et Mme !), Emmelyne Mitard, cellule de com' de choc, cellule de crise quand il faut, et épaules recevant les confessions de tous les thésards des alentours. Si on ajoute à ceci des talents certains d'organisation apéritivesque, un goût prononcé pour la bonne chère, la culture et le rire, on obtient les compagnons de route parfaits. Merci pour tous ces moments, et à bientôt ! (En plus quand on est en bons termes avec eux on peut parfois imprimer en urgence certains documents avec la bécane de pro, et avoir droit à un relooking de poster personnalisé !) Leurs proches voisins, Paula et Antoine, Aude Raquin, Fabien Guillon et Manu « IUF » Moreira ont souvent été là au soutien également. Merci les amis !

Au milieu de tous ces amis à remercier et saluer, j'en oublierais presque l'Ademe, Schlumberger et Total, fournisseurs du nerf de la guerre. Si ce statut paraît un peu réducteur, c'est grâce au soutien industriel que la recherche publique peut avancer sur des chantiers ambitieux, tel celui du stockage géologique du CO_2 , et rester connectée au monde de l'entreprise, ce qui aide parfois certains thésards à trouver leur voie après la thèse, paraît-il, de ce que j'ai cru entendre... donc merci !

Et puis bien sûr je ne serais rien sans mes parents qui eux-mêmes ne seraient rien sans leurs parents, etc. Alors un grand merci à ma famille, parents, frère, soeur, pièces rapportées, nièce et neveux, oncles, tantes, cousins et grands-parents pour leur amour, leur soutien psychologique autant que logistique, pour TOUT. Tant qu'à être dans la parenthèse fleur bleue, merci à toi Élise, d'être et d'avoir été là pour moi, toi, au bon endroit, au bon moment, parfaite. Et merci d'avance. N'oublions pas les Petits Pères, cette joyeuse bande d'allumés cabossés de tous horizons, qui a été une base solide de mon équilibre pendant ces années. J'ai pu m'appuyer sur leurs épaules, évacuer mon trop plein d'énergie, mon stress, ma frustration, en courant, riant, poussant, plaquant, riant, gueulant, percutant, riant, chantant, buvant, riant, voyageant, jouant, à leur côté. Merci les copains. Mon autre exutoire était le théâtre, avec la thérapie de groupe de la compagnie Tellem Chao et des ateliers du mercredi ! Le lieu idéal pour devenir le psychopathe que l'on rêve d'être durant la journée, pour passer son labo au lance-flammes, rire, pleurer et crier comme un forcené avant de revenir, calmé, bosser le lendemain matin, le sourire au lèvres. Merci Mylène, j'ai beaucoup reçu de tes cours, je me suis amusé, j'ai pas mal appris sur moi et ai rencontré de

vrais amis et plus. Sinon tant qu'à m'étaler dans cette seule partie de la thèse ou la concision n'est pas requise (et qui est généralement la plus lue, ne nous le cachons pas) je remercierai tout particulièrement les laboratoires de dynamique des fluides en milieu poreux hétérogènes du DUC et de l'INNÉ, pour les réunions fructueuses et l'approvisionnement en liquidités. Dans le désordre les professeurs Manu, Jean-Pierre, Malita, Jérôme, Goran, Jean-Fou, Hélène, Bruno, Philippe, Marie, Paul, Mathieu, Maud, Christelle, Luis, Ben, Laura, Camille, Ben Gotab, Alex, Gaye, Boulon, Tim.

Petit retour aux aspects plus pratiques, un grand merci à Aya Kouadio et Laure Meynadier pour la gestion ultra rapide de mon dossier de soutenance, pour la résolution de problèmes au cas par cas et pour leur patience face à mon sens inné de l'organisation et de l'administration. Merci à Marc Humpchfschmidscht et Lolo Pouilloux les maniaques du clavier, qui ont autant leur place dans cette catégorie que dans celle du paragraphe précédent !

Enfin, merci à Frédéric Perrier pour m'avoir invité à apporter ma petite contribution à son étude du site de Syabru-Bensi au Népal, campagne riche en apprentissage scientifique et en rencontres passionnantes (en particulier André Revil et en général l'ensemble du personnel du National Seismic Centre, Department of Mines and Geology de Katmandou avec qui j'ai eu la chance de mener ces expériences).

À tous, merci et à bientôt.

PS : Je vous ai oublié ? Désolé ! Envoyez donc vos plaintes à simon.contraires@gmail.com.

*Cet esprit, [...], inconnu jusqu'ici qui ne
peut être contenu dans des vaisseaux, ni
être réduit en un corps visible, je l'appelle
d'un nom nouveau, gaz.*

*Van Helmont (1580, 1644)
(source : Hoefer, 1858)*

À toi l'ami Rony.

Table des matières

Résumé	iii
Avant-Propos	v
Table des matières	xiii
Introduction	1
I Contexte général	3
1 Problématique du stockage géologique du CO_2	5
1.1 Le CO_2	5
1.1.1 Une conception antique de la matière	5
1.1.2 Observations et expériences menant à la caractérisation du dioxyde de carbone	6
1.2 Le stockage géologique du CO_2	8
1.2.1 Le réchauffement climatique	8
1.2.2 Le stockage océanique	10
1.2.3 Le stockage géologique en aquifère salin profond	11
1.2.4 Le stockage géologique en réservoir épuisé	12
1.2.5 La séquestration minérale	12
2 Recherche fondamentale en amont du stockage	13
2.1 Expériences de percolation réactive de dioxyde de carbone dans des calcaires poreux	13
2.2 Suivi temporel et spatial d'injections au laboratoire	14
2.3 Inscription de l'étude dans ce contexte	15
II Suivi géophysique d'injections de CO_2 dans des échantillons décimétriques de calcaire	17
3 Techniques expérimentales	19
3.1 Méthodes de caractérisation des échantillons	19
3.1.1 Etude de la porosité	19
3.1.2 Etude des propriétés hydrauliques et électriques	21
3.1.3 Etude des propriétés sismiques	26

3.2	Expériences de percolation réactive en circuit ouvert	28
4	Résultats	33
4.1	Caractérisation des échantillons avant expérience	33
4.2	Suivis chimique, hydraulique, et électrique de l'injection de CO_2	37
4.2.1	Calcaire des Estailades	37
4.2.2	Calcaire de Saint-Maximin	41
4.2.3	Discussion	44
4.3	Le facteur de formation électrique	44
4.4	Vitesse des ondes sismiques	47
4.4.1	Calcaire des Estailades	48
4.4.2	Calcaire de Saint-Maximin	52
4.5	Amplitude des ondes sismiques	57
4.5.1	Calcaire des Estailades	57
4.5.2	Calcaire de Saint-Maximin	59
4.5.3	Discussion	60
4.6	Caractérisation des échantillons après expérience	61
4.6.1	Caractérisation de l'hétérogénéité créée dans l'échantillon de calcaire des Estailades par déplacement miscible	61
4.6.2	Caractérisation post-expérience par tomodensitométrie	62
4.6.3	Discussion	68
4.7	Essai de caractérisation minéralogique de la calcite néoformée	70
4.7.1	MEB	71
4.7.2	Cathodoluminescence	75
4.8	Conclusions	79
III	Expériences en milieu granulaire	83
5	Suivi géoélectrique d'injections de fluides réactifs en milieu granulaire	85
5.1	Le Potentiel Spontané (PS)	86
5.1.1	Principe de la méthode et origine du PS	86
5.2	La Tomographie de Résistivité Électrique (ERT)	90
5.3	Le dispositif expérimental	92
5.3.1	Les mesures de PS	93
5.3.2	Les électrodes de résistivité électrique	96
5.3.3	Acquisition des données de l'ERT	97
5.3.4	Protocole de mesures automatisées	98
5.3.5	Inversion des données de résistivité électrique	98
5.4	Les expériences	102
5.4.1	Évolution du PS lors d'une injection d'eau salée	102
5.4.2	Inversion de l'ERT entre les différentes phases d'injection d'eau salée . . .	107
5.5	Conclusions et perspectives	114

IV Mesures géophysiques sur le terrain : le cas d'une « fumerolle tectonique »	117
6 Etude de de la source chaude de Syabru-Bensi, Népal central	119
6.1 Introduction	119
6.2 Présentation du site	120
6.3 Mesure des flux de CO_2	121
6.4 Résultats et discussion	124
6.4.1 Flux de dioxyde de carbone	124
6.4.2 Comparaison aux autres données et interprétation	126
6.5 Conclusions	128
V Conclusions générales	129
7 Conclusions et perspectives	131
Bibliographie	135
Table des figures	149
Liste des tableaux	151
VI Annexes	153
Annexe A	155
Protocole de mesures pour la tomographie de résistivité électrique (ERT)	155
Annexe B	165
Articles	165
A direct evidence for high carbon dioxide and radon-222 discharge in Central Nepal . .	165
Dipolar self-potential anomaly associated with carbon dioxide and radon exhalation at the Syabru-Bensi hot springs in Central Nepal	165

Introduction

Ce travail s'inscrit dans la problématique du stockage géologique du dioxyde de carbone (CO_2) comme moyen de lutte contre les émissions anthropiques de gaz à effet de serre. Il s'agit en particulier d'étudier l'effet d'une injection de CO_2 sur les propriétés hydrauliques de la roche encaissante, et les méthodes géophysiques permettant de suivre ces effets. Ainsi, nous nous sommes intéressés principalement à l'évolution spatiale et temporelle des propriétés électriques et élastiques d'échantillons calcaires lors d'injections d'eau saturée en CO_2 , à différentes échelles. L'étude des signaux acquis pendant ces expériences de percolation réactive, ainsi que la quantification des modifications apportées aux échantillons lors des injections, grâce à un volet de caractérisation multi-paramètres, a permis de définir l'effet de la modification du milieu poreux sur les observables géophysiques : vitesse et amplitude des ondes P et S, facteur de formation électrique (rapport des conductivités électriques du fluide et de la roche), et potentiel spontané (PS).

Cette étude présentera tout d'abord le contexte général dans lequel se situent ces recherches, avec notamment quelques considérations historiques suivies de l'introduction de la problématique du réchauffement climatique. Nous nous focaliserons ensuite sur le moyen de lutte contre les émissions de gaz à effet de serre abordé ici : le stockage géologique du CO_2 , avant d'inscrire brièvement cette étude dans son contexte scientifique.

Ensuite, la deuxième partie traitera d'expériences réalisées sur des échantillons de calcaire, de dimension décimétrique, soumis à des injections de solutions riches en dioxyde de carbone. Un suivi temporel de la variation de nombreux paramètres physicochimiques de la roche et du fluide ont permis de suivre l'évolution de la perméabilité et de la porosité de la roche au cours du temps au fur et à mesure de l'avancée des réactions de dissolution-précipitation du carbonate de calcium (calcite). Ce volet expérimental a été accompagné d'une caractérisation minutieuse des échantillons avant et après toute injection de fluide réactif, afin de quantifier les changements *a posteriori* et de calibrer les méthodes utilisées pour le suivi.

La troisième partie présente un modèle réduit de réservoir (cuve cylindrique), d'échelle quasi-métrique, équipé pour un suivi géoélectrique $3D$ d'injections de fluide réactif en milieu granulaire. Les méthodes choisies sont la mesure du PS en surface et la réalisation de tomographies de résistivité électriques (ERT) à trois dimensions sur les parois longitudinales de la cuve cylindrique. Les développements méthodologiques et logiciels nécessaires aux premiers tests et à l'interprétation des données, ainsi que les résultats préliminaires obtenus grâce à ce dispositif y sont détaillés.

Enfin, la dernière partie présente notre participation à une étude menée au Népal central en décembre-janvier 2006-2007 par une équipe dirigée par Frédéric Perrier. Cette campagne s'inscrit dans une collaboration internationale visant à caractériser un site de sources chaudes connaissant de très importantes émissions de dioxyde de carbone (CO_2) et de radon ($Rn-222$). L'utilisation d'un large panel de méthodes de terrain (ERT, PS, radar géologique, mesure de flux de gaz au sol, prélèvements chimiques) a permis d'établir des profils spatiaux et cartes multi-paramètres de ce site, visant à expliquer la nature des phénomènes observés, et le couplage entre les différentes grandeurs mesurés.

Première partie

Contexte général

Chapitre 1

Problématique du stockage géologique du CO_2

1.1 Le CO_2

Le dioxyde de carbone est aujourd'hui majoritairement évoqué pour sa contribution à l'effet de serre et au réchauffement climatique, et est par conséquent considéré comme un déchet. C'est dans cette problématique que s'inscrit la présente étude. Il est donc intéressant d'évoquer rapidement au préalable quelle fut la place de ce gaz dans l'histoire des sciences, avec le contexte et les étapes de sa découverte, avant de définir le cadre du problème et le contexte des recherches présentées ici.

1.1.1 Une conception antique de la matière

Jusqu'à la Renaissance, la science de la matière correspondait encore, à quelques différences près, aux modèles établis depuis l'Antiquité par Thalès, Empédocle ou Aristote, faisant intervenir les quatre éléments classiques.

En effet, cette conception aristotélicienne de la matière peut être décrite par ses quatre principes fondamentaux :

- la matière est continue et uniforme,
- elle est composée de quatre éléments : la terre, l'air, l'eau, le feu,
- ses quatre caractéristiques fondamentales sont : froid, sec, chaud, humide,
- le vide n'existe pas.

Au 17ème siècle, les doctrines des alchimistes remplacent celles des anciens (Joly, 2002). La réaction de combustion, par exemple, est décrite par la théorie du phlogistique développée par

Ernst-Georg Stahl. Selon lui, les réactions de combustion et de calcination libèrent le phlogistique, principe subtil et inflammable contenu dans le matériau :

« *Le phlogistique est du feu fixé dans la matière et qui s'en échappe lors des combustions* ».

Cette théorie présentait cependant un inconvénient majeur, qui lui valut bon nombre de détracteurs ; si la calcination libère le phlogistique contenu dans le métal, comment expliquer que le métal calciné pèse plus lourd qu'initialement ?

Stahl et ses disciples répondaient à cette question en attribuant une masse négative au phlogistique, ou en décrétant que l'augmentation du poids du métal est due à l'air, plus lourd, qui le remplace.

En marge de la tradition alchimique, en 1624, Antoine de Villon et Étienne de Clave affirmaient pouvoir réfuter Aristote publiquement grâce à des expériences chimiques de distillation fractionnée permettant, en augmentant peu à peu la température, de faire apparaître successivement l'eau, la terre, le mercure, le soufre et le sel (Joly, 2002)(Kahn, 2001). Il est intéressant de rappeler les implications philosophiques et théologiques de ces considérations (al)chimiques en notant qu'à cette époque, ces thèses anti-aristotéliennes furent interdites par la faculté de théologie de Paris.

1.1.2 Observations et expériences menant à la caractérisation du dioxyde de carbone

Le premier à écrire au sujet de ce gaz est le médecin et alchimiste suisse Paracelse, au 16^{ème} siècle, qui décrit une vapeur, un fluide élastique, qui se dégage des corps lors des combustions, fermentations et effervescences. Désigné par les anciens *spiritus silvestre* (esprit sauvage), lui l'appelle simplement « air » (Lavoisier, 1774).

De son vrai nom Philippus Theophrastus Aureolus Bombastus von Hohenheim, ce personnage, parmi ceux à qui l'alchimie doit le plus de par sa grande liberté de ton et de manoeuvre, son éloquence et son imagination, fût le premier à prôner une utilisation thérapeutique de remèdes tirés du règne minéral (Franck, 1852 ; Raynaud, 1863). Il a, en outre, légué à la postérité quelques citations savoureuses, dont : “Mes écrits dureront et subsisteront jusqu'au dernier jour du monde comme véritables et incontestables.”.

Son disciple, Jean Baptist Van Helmont, médecin, alchimiste, et physiologiste, nomme ce fluide *gaz*, et est le premier à entreprendre d'en mener une étude suivie. L'étymologie de ce terme, élargi aujourd'hui à tout fluide aériforme paraît formé du flamand *geest* (esprit) ou du verbe *gäschen*, signifiant bouillir, fermenter (Littré, 1877). Il réalise de nombreuses expériences montrant son rôle important et son omniprésence dans la nature. Il s'agit d'expériences de fermentation, de cuisson, de combustion, d'effervescences, de digestion, de décomposition. De plus, il démontre qu'il s'agit d'un fluide différent de l'air que nous respirons en mettant en évidence

le caractère impropre à la respiration animale de ce gaz. La découverte du dioxyde de carbone lui est aussi souvent attribuée, même si il s'agit d'avantage, comme on peut le voir ici, d'une description progressive sur des générations.

Au milieu du 17ème siècle, le chimiste irlandais Robert Boyle refait les expériences de Van Helmont et les étend, grâce à d'importants développements expérimentaux, telle sa machine pneumatique, dérivée de celle d'Otto von Guericke. Il nomme ce gaz *l'air artificiel*, et montre le premier que si un volume d'*air* se dégage de quelques opérations, il est absorbé lors de la réaction de combustion du soufre, de l'ambre, ou du camphre. Il en conclue l'existence de différents *airs*.

Un peu plus tard, Stephen Hales (1677-1761), physiologiste et chimiste anglais, décrit dans sa « Statique des Végétaux » des expériences simples et très précises permettant d'aborder le poids et le volume des gaz (Lavoisier, 1774). Il est ainsi le premier à quantifier précisément les volumes de gaz produits ou consommés lors de la combustion, de la fermentation, ou autres « combinaisons ».

Pour tenter de poser un cadre théorique sur ces observations, le chimiste écossais Joseph Black de la fin du 18ème siècle, professeur de James Watt, introduit le terme d'*air fixe*, qu'il oppose à l'air élastique commun, mais qu'il considère néanmoins répandu dans l'atmosphère. Il choisit ce vocable en vertu des propriétés qu'il lui confère. Ainsi, selon lui : « Toutes les terres qui se réduisent en chaux vive par la calcination ne sont qu'un combiné d'une grande quantité d'air fixe avec une terre alcaline. »

Les théories de Joseph Black ont par la suite été clarifiées par le botaniste austro-hollandais Nikolaus Joseph von Jacquin (1727-1817) (Lavoisier, 1774).

De nombreuses avancées dans la description de ce gaz furent également apportées par Joseph Priestley (seconde moitié du 18ème siècle). Cet expérimentateur anglais a commencé ses recherches par l'étude du fluide stagnant sur les cuves de fermentation de la bière, dans les brasseries de son voisinage. Expérimentateur très méticuleux, il a enrichi la connaissance des gaz en les classifiant en substances de nature différente selon leurs propriétés. Il a distingué par exemple :

- l'air fixe (CO_2),
- l'air dans lequel on fait brûler du soufre (SO_2),
- l'air inflammable (H_2),
- l'air nitreux (N_2),
- l'air corrompu par la respiration.

Il définit l'air fixe comme le produit constant de la fermentation et de l'effervescence, à peu près de même pesanteur que notre atmosphère. Il montre qu'il peut être « absorbé » par l'eau, et que les animaux y meurent sur le champ. Priestley, ayant eu le premier l'idée de gazéifier de l'eau et ayant surtout publié la manière pour y parvenir, est en quelque sorte le père du soda.

Une grande partie de la connaissance que l'on a des études de ces hommes provient des travaux

d'Antoine-Laurent de Lavoisier (1743-1794). En effet, celui-ci a fait un état de l'art très précis de ces recherches sur les gaz dans son ouvrage « Opuscules Physiques et Chimiques » (Lavoisier, 1774). Il y recense les expériences de ses prédécesseurs, en a refait la majorité, avec un protocole détaillé et une quantification minutieuse.

Ainsi, en 1776, Lavoisier montre que la combustion du charbon libère de l'air fixe et de l'air vital, et en conclut que l'air fixe est une sorte d'oxyde de carbone.

En 1803, John Dalton élabore une théorie selon laquelle la matière est composée d'atomes de masses différentes qui se combinent dans des proportions simples, et enfin, en 1840, Jean Servais Stas établit avec Jean-Baptiste Dumas la masse atomique de nombreux éléments avec une grande précision, dont les atomes d'oxygène O et de carbone C. Ceci a ainsi permis de confirmer la nature de l'air fixe : du dioxyde de carbone (CO_2).

1.2 Le stockage géologique du CO_2

1.2.1 Le réchauffement climatique

Depuis la Conférence des Nations Unies sur l'Environnement et le Développement qui s'est tenue à Rio en 1992, il est majoritairement admis que les émissions anthropogéniques de gaz à effet de serre sont à l'origine de changements climatiques (Rio, 1992). Parmi ces gaz, l'acteur majoritaire du réchauffement est le dioxyde de carbone, émanant principalement de la combustion des énergies fossiles.

La figure 1.1 représente l'évolution de la température globale moyenne à la surface de la Terre depuis un siècle et demi (Solomon *et al.*, 2007). Elle est issue du quatrième rapport d'évaluation du Groupe Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC ou IPCC) produit en 2007. Des ajustements linéaires sont également reportés sur les données, illustrant les lois d'évolution de la température en fonction du temps pour des périodes de 25, 50, 100, et 150 ans. La pente croissante de ces ajustements illustre l'aspect accéléré du réchauffement ces dernières décennies. La courbe bleue est une version lissée des données permettant de mettre en valeur les variations décennales de la température.

Les modèles climatiques pour le XXème siècle expliquent correctement la variation faible des températures jusqu'en 1915, puis attribuent des causes naturelles aux fluctuations visibles de température du début du siècle, comme les variations des radiations solaires ou l'influence du volcanisme. Ensuite, des années 40 aux années 70, la pollution causée par l'industrialisation croissante successive à la seconde guerre mondiale a contribué à un refroidissement, vite suivi du réchauffement important observé depuis le milieu des années 1970 jusqu'à aujourd'hui, conséquence des émissions de CO_2 et autres gaz à effet de serre.

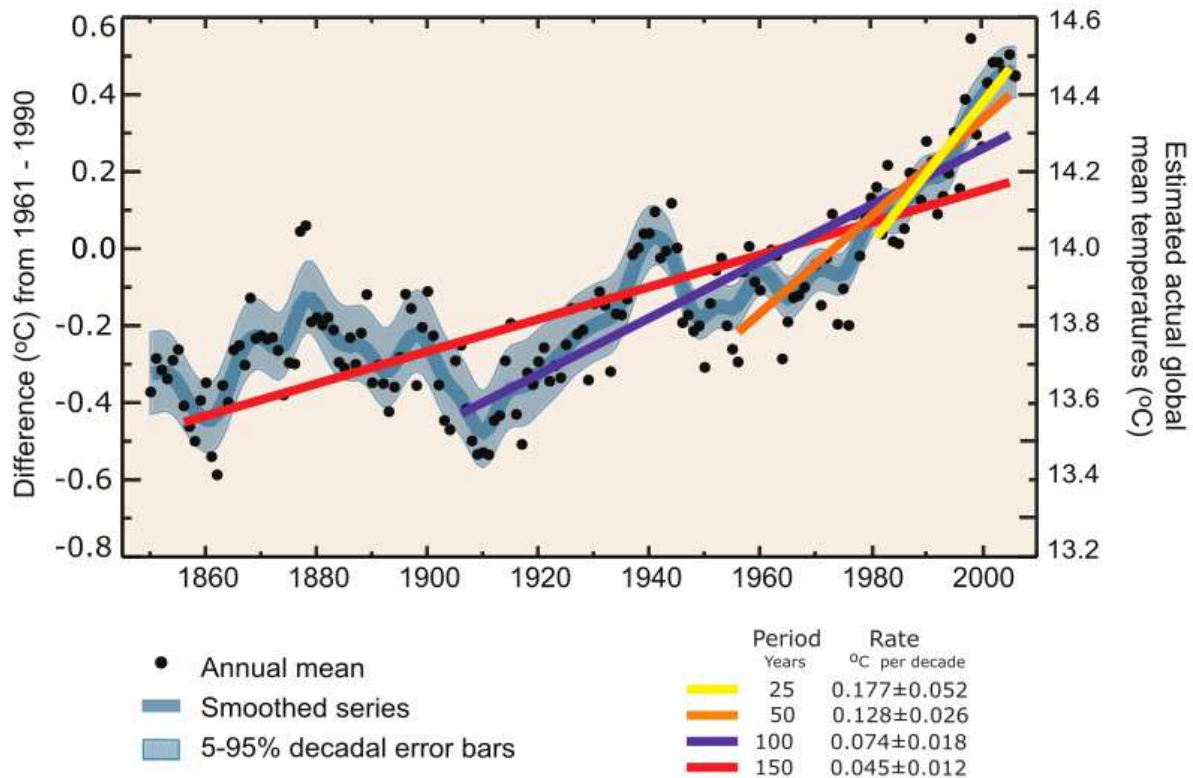


FIGURE 1.1 – Température globale annuelle moyenne observée (points noirs). En ordonnée, à gauche, l'anomalie relative à la moyenne établie sur les années 1961 à 1990, et à droite la température estimée en °C. Lois linéaires d'évolution de la température en fonction du temps pour des périodes de 25 (en jaune), 50 (en orange), 100 (en violet), et 150 ans (en rouge). En bleu on peut voir les données lissées de température. En bleu clair avec l'estimation de l'erreur sur ces données. (Solomon *et al.*, 2007)

Des mesures telles qu'une meilleure gestion des énergies ou le développement d'énergies renouvelables peuvent participer à réduire ces émissions. Cependant, si l'on considère qu'aujourd'hui 85% de l'énergie utilisée par l'Homme provient des ressources fossiles, on ne peut envisager un abandon rapide des combustibles que sont le charbon, le pétrole et le gaz sans bouleversement de l'économie mondiale. De plus, en l'absence de mesures visant à réduire les émissions, la croissance actuelle prédit pour 2030 une augmentation des gaz à effet de serre de l'ordre de 25 à 90% selon le scénario adopté.

En 2004, la somme des émissions anthropiques de gaz à effet de serre s'est élevée à 49 Gt en équivalent carbone, dont 77% de CO_2 (Solomon *et al.*, 2007).

Aussi, bien qu'il faille agir à plusieurs niveaux pour espérer obtenir un résultat rapide, il est admis aujourd'hui que ces émissions de CO_2 peuvent être fortement réduites par la capture de ce gaz et son stockage dans des formations géologiques (Pacala et Socolow, 2004). Le CO_2 concerné, c'est à dire celui qui peut être capturé le plus facilement, est celui provenant de la transformation de l'énergie, avec le traitement du gaz naturel et les usines de production d'ammoniac et

d'hydrogène, ou celui provenant de l'industrie manufacturière.

Il existe différents types de sites qui intéressent la communauté scientifique pour le stockage du CO_2 . Il s'agit tout d'abord des océans, dans lesquels on a tout d'abord pensé, dès la fin des années 70, injecter du CO_2 . Le stockage en couches géologiques profondes est d'avantage d'actualité, principalement en aquifère profond ou dans des réservoirs d'hydrocarbures épuisés (pétrole, gaz, ou charbon). Les différentes options envisagées sont résumées sur le schéma de la figure 1.2, et le diagramme de la figure 1.3 classe la sécurité de ces options.

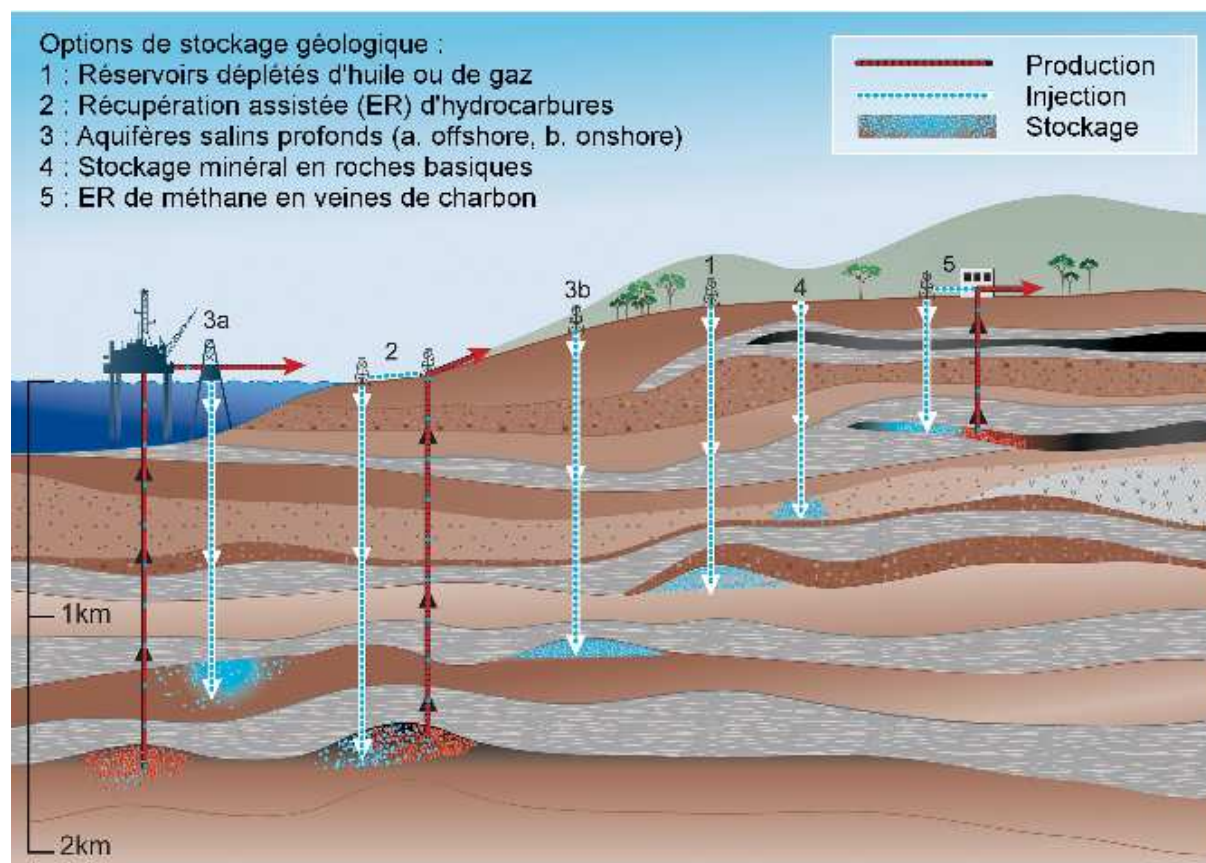


FIGURE 1.2 – Options majoritairement envisagées pour le stockage géologique du CO_2 .

1.2.2 Le stockage océanique

L'océan étant un immense réservoir de carbone, bien plus vaste que l'atmosphère, on a pu penser qu'un apport artificiel de carbone d'origine humaine serait inoffensif. A tel point que certains ont envisagé de capturer le gaz carbonique à la source, de le compresser jusqu'à l'état liquide et de l'injecter dans les profondeurs océaniques. Compte tenu des modèles de circulation océanique, le gaz carbonique ainsi stocké ne remonterait en surface, donc au contact de l'atmosphère, qu'après des temps considérables.

Cependant le stockage océanique présente plusieurs inconvénients majeurs. Tout d'abord,

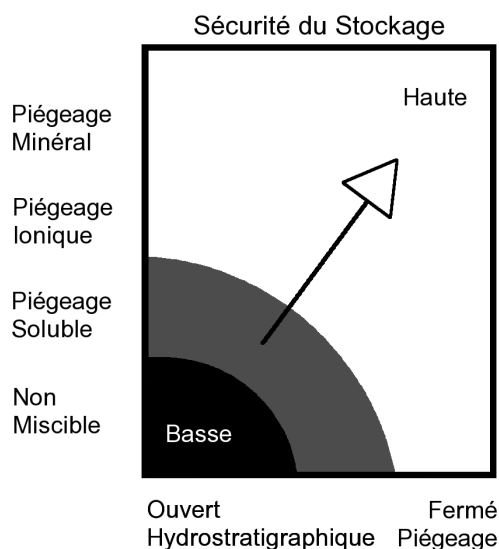


FIGURE 1.3 – *Ce graphique représente la sécurité d'un stockage de CO_2 . On y voit qu'un piégeage minéral serait la garantie d'une séquestration réussie quel que soit le milieu choisi.*

contrairement à un réservoir géologique, l'océan est en contact direct avec l'atmosphère. C'est un milieu ouvert qui ne peut garantir le confinement du CO_2 de manière durable. De plus les fonds marins sont mal connus, et sont peuplés de nombreuses espèces qui ne survivraient probablement pas à une injection de quantités importantes de CO_2 . Enfin, l'opinion publique étant très sensible à la protection des océans, et devant ces nombreuses inconnues, le stockage océanique n'est plus une option envisagée aujourd'hui.

1.2.3 Le stockage géologique en aquifère salin profond

Les aquifères salins profonds offrent un immense volume pour un éventuel stockage de CO_2 (Bentham et Kirby, 2005). Ils sont très répandus et il en existe à proximité des principaux points d'émission européens. De plus, la très forte salinité de l'eau contenue dans ces formations la rend impropre à toute consommation et permet donc d'éviter les risques de forage à ces fins à l'avenir. Leur profondeur permet d'avoir des conditions de pression et de température favorables à l'injection de CO_2 sous forme supercritique. En effet, au delà de son point critique (31,04 °C et 7,382 MPa), le CO_2 présente une viscosité proche de celle d'un gaz et une densité proche de celle d'un liquide, ces deux paramètres facilitant l'injection et le stockage. Ainsi, un aquifère d'une profondeur de 800 m minimum est nécessaire à un stockage en conditions supercritiques (Pruess *et al.*, 2003).

Par ailleurs, les aquifères ont des vitesses de filtration très lentes (0,33 m.an⁻¹ par exemple pour la vitesse de Darcy horizontale du Dogger en région parisienne) qui empêcheraient la progression trop rapide d'un éventuel panache de CO_2 à travers la nappe (Wei *et al.*, 1990).

La première expérience mondiale de stockage de CO_2 à échelle réelle est d'ailleurs fon-

dée sur ce principe. Il s'agit de l'injection en aquifère profond dans le champ de Sleipner en mer du Nord (Norvège), par la compagnie Statoil depuis 1996. En fait ce projet réinjecte juste le CO_2 produit sur ce site de production de gaz naturel dans une couche plus profonde (Korbøl et Kaddour, 1995).

1.2.4 Le stockage géologique en réservoir épuisé

C'est fort logiquement que la communauté scientifique a pensé à injecter du CO_2 dans des réservoirs d'hydrocarbures épuisés pour le stocker. En effet, ces couches rocheuses ont su conserver des fluides de manière étanche durant des millions d'années. De plus, pour l'exploration, ces réservoirs ont été parfaitement caractérisés (Winter et Bergman, 1993).

Une première expérience d'injection en réservoir d'hydrocarbures est lancée à Weyburn au Canada depuis 2000, utilisant la technique couramment appelée EOR (Enhanced Oil Recovery, récupération assistée de pétrole (Bergman *et al.*, 1997)) dans l'industrie pétrolière. Il s'agit de récupérer le pétrole résiduel de puits quasiment épuisés en le chassant avec du CO_2 .

Cependant, à long terme, les nombreux forages réalisés peuvent avoir altéré la couverture rocheuse et risquent de nuire à l'intégrité du stockage.

1.2.5 La séquestration minérale

Le Centre de Recherches IPGP Schlumberger TOTAL sur le Stockage Géologique du CO_2 a pris le parti de s'intéresser à la séquestration minérale du CO_2 afin de garantir l'intégrité des stockages sur des temps géologiques.

Le principe est d'injecter le CO_2 dans un environnement avec lequel il pourrait interagir chimiquement pour précipiter sous formes de carbonates (Bachu *et al.*, 1994). Ainsi, le CO_2 étant séquestré à l'état solide, aucune fuite ne serait à craindre. Bien sûr, cette technique nécessite une très bonne connaissance de la physico-chimie de ces réactions de dissolution-précipitation (Lopez, 2006), et de l'impact de cette modification de l'espace poral sur l'écoulement du CO_2 injecté, et donc sur l'évolution du stockage.

C'est dans ce cadre que se place mon travail de thèse, entre les effets des réactions de dissolution-précipitation de la calcite (carbonate de calcium $CaCO_3$) sur la porosité et la perméabilité de la roche encaissante, et les effets de la modification de ces paramètres intrinsèques de la roche sur les observables géophysiques. La séquestration minérale est également envisagée en roches basiques et ultrabasiques. En effet, le CO_2 injecté pourrait provoquer la dissolution des silicates magnésiens et ferreux-calciques que contiennent ces roches, et le CO_2 pourrait ensuite être stocké sous forme de magnésite précipitée (sidérite/ankérite/calcite) (Dufaud, 2006).

Chapitre 2

Recherche fondamentale en amont du stockage

Une partie de la communauté scientifique impliquée dans la recherche concernant le stockage géologique du CO_2 a choisi de procéder à des expériences de laboratoire pour aborder différents aspects de cette problématique. Parmi ces expériences, une partie est consacrée à l'étude de la percolation réactive de CO_2 en milieu poreux, qui est le noeud du problème pour une injection et un stockage de CO_2 . Les dispositifs utilisés diffèrent par la taille et la lithologie des échantillons étudiés, mais également par la pression et la température auxquelles sont maintenues les roches. Certaines équipes conçoivent des dispositifs permettant d'exercer des contraintes mécaniques sur les carottes au cours de l'injection (Le Guen, 2006), tandis que d'autres choisissent de travailler à pression et température ambiante afin d'avoir un montage plus modulable, et d'avoir ainsi plus facilement accès à l'échantillon pour mesurer divers paramètres (Singurindy et Berkowitz, 2005). Enfin, certains injectent directement du CO_2 , supercritique ou gazeux, quand d'autres choisissent d'injecter de l'eau à la pression partielle de CO_2 désirée.

2.1 Expériences de percolation réactive de dioxyde de carbone dans des calcaires poreux

De l'échelle du pore à des dispositifs métriques, et selon l'orientation désirée, la percolation de fluide réactif permet de suivre l'évolution de très nombreux paramètres de la roche et du fluide. Ces paramètres appartiennent historiquement à des disciplines aussi variées que la pétrophysique, la géochimie, la mécanique, l'hydrologie, la géophysique, la microbiologie, etc. Les phénomènes affectant ces différents paramètres, leur évolution et leurs éventuels couplages sont à maîtriser pour effectuer un stockage intègre de fluide acide, et c'est pourquoi la communauté scientifique internationale multiplie les initiatives en ce sens, chaque recherche spécialisée s'inscrivant dans un contexte plus large visant à obtenir une connaissance de l'ensemble des phénomènes intervenant lors d'un stockage.

D'un point de vue mécanique, par exemple, l'intégrité d'un réservoir de stockage sera affectée par l'injection de CO_2 . Afin d'analyser et de comprendre ces risques, un protocole expérimental a été établi par Le Guen (Le Guen, 2006) pour étudier la dissolution sous contrainte triaxiale par injection de CO_2 pour différentes roches soumises à des injections de fluides de pression partielle de CO_2 différente. Ainsi, pour un fluide à forte p_{CO_2} (jusqu'à 8 MPa), des vitesses de déformation de 1,7 à 5 fois plus élevées que pour un fluide à faible p_{CO_2} ont été observées.

Certaines de ces expériences ont mis en évidence l'existence d'instabilités de dissolution-circulation. En effet, selon la vitesse des réactions chimiques et la vitesse de circulation du fluide, différents cas de figure vont être rencontrés. Si la cinétique de réaction chimique est plus rapide que la circulation du fluide, la dissolution sera homogène. En revanche, ces instabilités se développent si les réactions chimiques interviennent de manière hétérogène dans l'échantillon, en raison d'une vitesse de circulation supérieure à la cinétique chimique. On a alors la création de chemins de circulation préférentielle dans l'échantillon, des structures de rayons d'accès importants également appelées *wormholes*, « trous de vers » (Renard *et al.*, 1998). Ces wormholes sont formés par les mêmes processus que ceux menant à la création des karsts par exemple, et leur compréhension est fondamentale dans l'optique du stockage d'un fluide réactif en milieu poreux.

Le rôle des fractures lors d'un écoulement de fluide réactif est également un terrain d'étude actif. Ainsi, certaines études visent à appliquer la microtomographie à rayons X à la caractérisation de la géométrie de fractures soumises à un écoulement de fluide réactif (Noiriel, 2005), d'autres investiguent le rôle des fractures (Singurindy et Berkowitz, 2005) dans l'évolution de la porosité et de la perméabilité d'échantillons soumis à des réactions couplées de dissolution et précipitation. La modélisation numérique géochimique et couplée chimie - transport, à différentes échelles spatiales, permet d'expliquer des résultats expérimentaux et d'essayer de prédire les effets d'injections de CO_2 dans des conditions variées sur différentes lithologies (Xu *et al.*, 2003 ; Brosse *et al.*, 2005 ; Renard *et al.*, 2005).

Dans la même problématique, l'étude de l'impact de ces réactions sur la biosphère, et le couplage entre l'activité microbiologique et les cinétiques chimiques de dissolution et précipitation intervenant lors de la séquestration minérale du CO_2 est un sujet d'étude très novateur, à la frontière de plusieurs disciplines (Ménez *et al.*, 2007).

2.2 Suivi temporel et spatial d'injections au laboratoire

Aucun stockage ne serait envisageable sans un suivi en temps réel au cours de l'injection, puis une surveillance du site pendant toute la durée de vie du stockage. La géochimie et la géophysique sont les sciences qui permettront de réaliser ce *monitoring*. Nous nous intéresserons ici aux aspects géophysiques, et en particulier aux méthodes électriques et sismiques. En effet, ces méthodes de surface, très répandues en sciences de la Terre, permettent d'imager le sous-sol et de quantifier de nombreux paramètres intrinsèques à la roche cible, sans forages et de manière étendue. Il est évident qu'un forage est susceptible de nuire à l'intégrité d'un éventuel site de

stockage, et son coût non négligeable ainsi que son aspect ponctuel incitent à privilégier autant que possible l’usage de la géophysique.

Cependant, il est auparavant indispensable de déterminer quelles méthodes seront les plus judicieuses et efficaces pour parvenir à cet objectif. Pour ce faire, et afin de quantifier précisément les modifications des propriétés hydrauliques, élastiques ou électriques de la roche encaissante lors du stockage, il est capital de procéder d’abord à des expériences sur des éprouvettes de roches et sur des modèles réduits en laboratoire. Ainsi, on pourra suivre l’évolution des propriétés intrinsèques de la roche soumise à une injection à différentes échelles, de l’échelle du pore à une échelle quasi-métrique.

Certains auteurs essaient de mettre au point un monitoring « direct » du CO_2 , c’est à dire d’imager le fluide injecté dans des échantillons (Myer, 2001), et non les modifications qu’il engendre sur la géométrie de l’espace poral et la circulation hydraulique.

Les méthodes géoélectriques sont classiquement utilisées pour ces problématiques hydrogéophysiques, le Potentiel Spontané (PS) permettant notamment de suivre des fluides en milieu poreux (Naudet *et al.*, 2003 ; Mainault, 2004 ; Revil *et al.*, 2004). La Tomographie de Résistivité Électrique est, elle, utilisée sur le terrain pour imager la résistivité du sous-sol, et est souvent associée à des expériences métriques d’injection en milieu granulaire, sur site pilote (Kemna, 2002 ; Slater *et al.*, 2000).

2.3 Inscription de l’étude dans ce contexte

Ce travail de thèse vise à contribuer à la mise au point des méthodes géophysiques permettant de suivre l’évolution des paramètres hydrauliques (porosité et perméabilité) d’un réservoir de stockage en réponse à une injection de CO_2 . En effet, une injection de fluide interagissant avec la roche du site de stockage pourrait ouvrir ou colmater les fissures et les pores de la roche réservoir et modifier de manière conséquente la qualité du stockage, comme schématisé sur la figure (2.1).

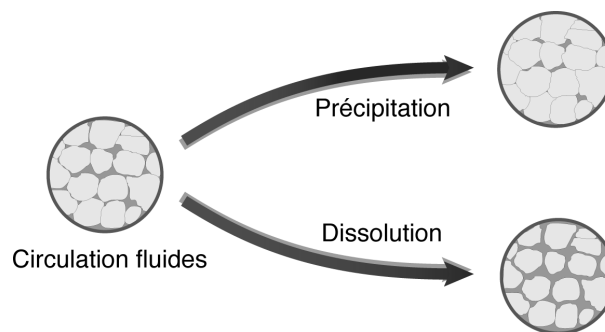


FIGURE 2.1 – *Effet de la dissolution et de la précipitation sur l’espace poral.*

La géophysique de surface présente l'avantage de permettre un suivi continu dans l'espace et dans le temps d'un site de stockage, sans perturber son intégrité, contrairement aux forages.

Afin de déterminer les méthodes géophysiques les plus adaptées à la mesure de ces effets hydrauliques sur le terrain et de les étalonner, cette thèse comporte trois volets :

- Un volet expérimental en laboratoire, sur des échantillons bien caractérisés et dans des conditions bien contrôlées, avec l'étude des effets de la dissolution et de la précipitation des minéraux sur les propriétés hydrauliques de la roche et sur les observables géophysiques (conductivité électrique, vitesse et atténuation des ondes P et S, ...)
- Un second cycle d'expériences en milieu granulaire, dans une cuve de dimensions sub-métriques, avec un suivi géoélectrique d'une injection de fluide réactif par Potentiel Spontané (PS) et tomographie de résistivité électrique (ERT).
- Enfin, un volet de terrain, avec l'étude multiparamètres d'un site présentant un très fort dégagement naturel de CO_2 à Syabru-Bensi, au Népal.

Deuxième partie

Suivi géophysique d'injections de CO_2 dans des échantillons décimétriques de calcaire

Chapitre 3

Techniques expérimentales

Le premier volet de ce travail de thèse consiste à étudier les effets hydrauliques d'injections de solutions riches en CO_2 sur des échantillons décimétriques de calcaires. L'objectif est de quantifier, à l'échelle du laboratoire, l'effet de réactions de dissolution/précipitation de calcite sur les observables géophysiques. Ces observables sont l'atténuation et la vitesse des ondes P et S, ainsi que le facteur de formation électrique de la roche (rapport entre la conductivité électrique du fluide contenu dans les pores et la conductivité totale de la roche). L'étude de l'évolution de la porosité et de la perméabilité des échantillons permettra de relier les variations de ces observables aux modifications du réseau poreux de la roche et de ses propriétés hydrauliques.

3.1 Méthodes de caractérisation des échantillons

Avant de commencer les expériences de dissolution/précipitation, il est nécessaire de caractériser très précisément les échantillons. Cette caractérisation sera à reproduire après les expériences, afin de quantifier l'effet d'une injection de CO_2 sur les paramètres hydrauliques et sur les différentes observables géophysiques. La caractérisation a consisté en la mesure de la porosité, de la perméabilité, de la distribution des rayons d'accès aux pores, des propriétés électriques (facteur de formation, coefficient de cimentation et tortuosité électrique) et de l'hétérogénéité de la roche. Cette dernière a été déterminée par tomodensitométrie (TDM) au scanner à rayons X, par suivi électrique de déplacements miscibles et par la mesure de la vitesse des ondes P et S le long de l'échantillon. Dans les paragraphes suivants, nous décrivons les méthodes de caractérisation utilisées dans cette étude.

3.1.1 Etude de la porosité

La porosité des échantillons peut être obtenue par différentes méthodes.

a) Par saturation sous vide

La porosité connectée d'un échantillon peut être mesurée en saturant avec de l'eau un échantillon, préalablement mis sous vide, puis en calculant le rapport entre le volume de fluide injecté et le volume total de l'échantillon. Nous réalisons cette mesure avec un macroperméètre (cf. section 3.1.2.1).

b) Par tomographie à rayons X

La porosité des échantillons peut être reliée à l'atténuation des rayons X, mesurable par tomomodensitométrie (TDM). En effet, l'air des pores ou la matrice minérale de la roche absorbent de manière différente les rayons X. En mesurant la densité radiologique par transmission, et en faisant varier l'orientation du faisceau de rayons X, on peut effectuer des profils longitudinaux de densité radiologique et des coupes de l'atténuation de ces rayons par les échantillons. Les zones de faible atténuation sont les pores, et les zones d'atténuation plus importante correspondent à la matrice rocheuse. Ces profils de densité représentent les coefficients d'atténuation exprimés en Unités Hounsfield (UH) en fonction de la position. Cette unité est définie par rapport à des références, l'atténuation de l'eau ayant la valeur de 0 UH , comme présenté dans le tableau (TAB. 3.1).

Matériau	Coefficient d'atténuation (UH)
eau	0
air	-1000
os	1000

TABLE 3.1 – Définition de l'Unité Hounsfield d'atténuation des rayons X

Dans la section 3.1.3.1 nous verrons que la TDM rend bien compte des variations locales de porosité, et donc de l'hétérogénéité des échantillons, tout comme la mesure des vitesses sismiques.

c) Par observation microscopique

On peut visualiser directement la porosité à plus petite échelle par microscopie optique de lames minces. En effet, en injectant une résine colorée dans l'échantillon rocheux, avant découpe d'une lame mince, l'espace poral devient directement visible, et les différentes composantes de la porosité, intergranulaire et intragranulaire, sont mises en évidence. De plus, des méthodes telles que la microscopie électronique à balayage (MEB) ou la cathodoluminescence peuvent être utilisées sur des lames minces sans résine injectée.

d) Par porosimétrie au mercure

La porosimétrie au mercure est une méthode qui permet de connaître la distribution des rayons d'accès aux pores d'une roche. Cette technique est une application à l'espace poral de la relation (3.1), reliant la différence de pression entre deux fluides non miscibles dans un tube capillaire au rayon de ce tube.

$$P_c = \frac{2\sigma \cos(\theta)}{r} \quad , \quad (3.1)$$

avec P_c la différence de pression appliquée entre les deux extrémités du capillaire (en Pa), θ l'angle de contact dépendant des deux fluides choisis, σ la tension superficielle (en $N.m^{-1}$), et r le rayon du capillaire (en m).

Ainsi, une mesure de porosimétrie au mercure revient à remplir l'espace poreux de la roche avec du mercure injecté grâce à un gradient de pression positif. La connaissance du volume de mercure injecté à chaque instant donne alors accès à la distribution des rayons d'accès aux pores de l'échantillon, et le volume totale de mercure injecté en fin d'expérience fournit la valeur de la porosité connectée de la roche.

3.1.2 Etude des propriétés hydrauliques et électriques

3.1.2.1 Mesures de perméabilité

La perméabilité k d'une roche caractérise la facilité avec laquelle un fluide, n'interagissant pas avec la roche, circule dans son réseau poreux. Ainsi pour un liquide monophasique circulant à travers un milieu poreux de dimension finie, le flux est relié au gradient de pression appliqué à l'échantillon par la Loi de Darcy :

$$q = k \frac{A \Delta P}{\mu L} \quad , \quad (3.2)$$

avec q le flux, k la perméabilité, A la surface de la tranche de l'échantillon, ΔP le gradient de pression imposé aux extrémité de l'échantillon, μ la viscosité du fluide, et L la longueur de l'échantillon.

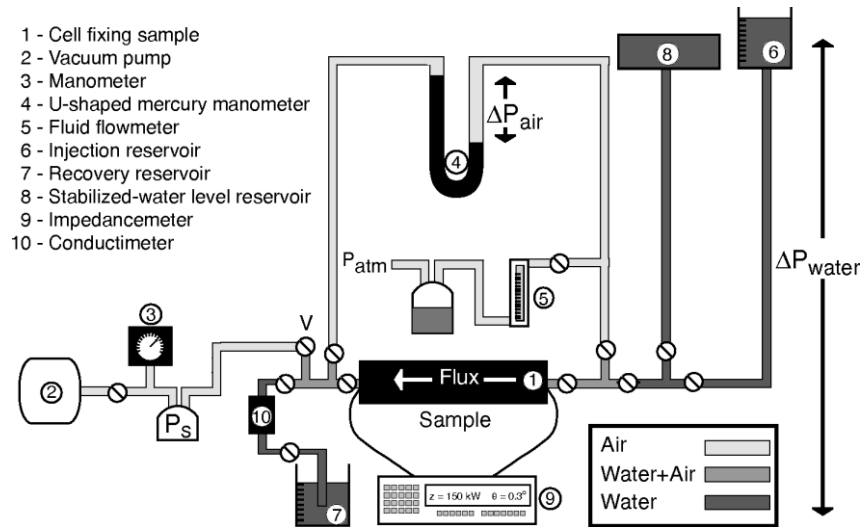


FIGURE 3.1 – Schéma de fonctionnement du perméamètre macroscopique (d'après Clavaud 2001).

Pour effectuer des mesures de perméabilité au laboratoire, nous utilisons un perméamètre macroscopique (figure 3.1), permettant de faire des mesures de la perméabilité à l'air et à l'eau,

mais également d'effectuer des mesures de conductivité électrique et des déplacements miscibles sur de grands échantillons. Cet appareil a été développé par Jean-Baptiste Clavaud au Laboratoire des Géomatériaux durant sa thèse (Clavaud, 2001). Il permet de mesurer la perméabilité ou l'hétérogénéité d'un échantillon rocheux. Pour illustrer ses fonctionnalités et le mode opératoire, nous présentons dans les paragraphes suivants les expériences effectuées sur un des deux échantillons de calcaire utilisés dans cette étude.

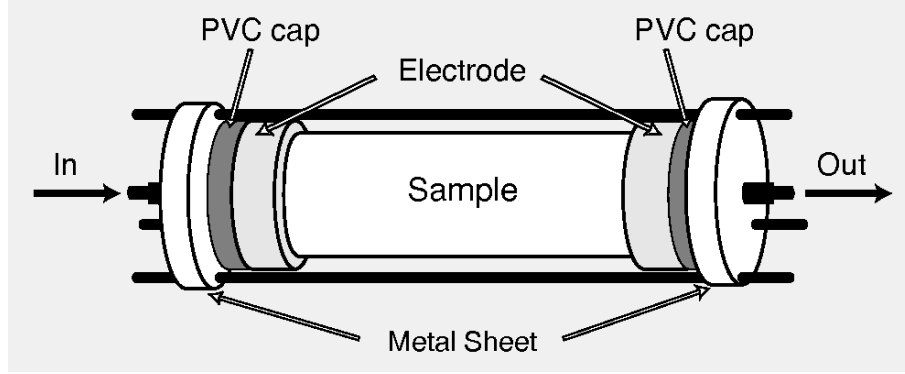


FIGURE 3.2 – Schéma détaillé de la cellule maintenant l'échantillon en place pendant les expériences. L'éprouvette est couverte de résine sur l'ensemble de sa longueur et est maintenue au contact de deux électrodes en inox permettant de mesurer sa conductivité électrique. Ce dispositif est celui utilisé sur le macroperméamètre et sur le montage de percolation réactive.

3.1.2.2 Mesure de la perméabilité à l'air

On place l'échantillon (dont l'étanchéité aura été préalablement vérifiée) dans la cellule de fixation qui comprend deux électrodes (figure 3.2), et on fait le vide dans un grand dessiccateur entre la pompe à vide et le système. En ouvrant le circuit, nous avons donc deux pressions différentes aux deux extrémités de l'échantillon, la pression P_1 correspondant au vide d'un côté, et la pression P_0 atmosphérique de l'autre. Il s'agit donc de soumettre l'échantillon à un gradient de pression que l'on régule via une vanne située entre le récipient mis à vide et l'échantillon et que l'on mesure grâce au manomètre à mercure. Le principe de l'expérience s'appuie sur la mesure simultanée du débit d'air en entrée du système et du gradient de pression ΔP . Ainsi, connaissant la géométrie de l'échantillon et la viscosité du fluide, l'équation (3.2) permet d'obtenir directement la perméabilité absolue à l'air, par :

$$k = \frac{q \cdot P_0}{\Delta P \cdot P_m} \frac{\mu L}{A} \quad , \quad (3.3)$$

avec q le flux (en $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), k la perméabilité (en D) ($0,987 \mu\text{m}^2 = 1D$), A la surface de la tranche de l'échantillon (en cm^2), ΔP le gradient de pression imposé aux extrémité de l'échantillon (en atm), P_0 la pression atmosphérique (en atm), P_m la pression moyenne dans l'échantillon $P_m = (P_0 + P_1)/2 = (2P_0 - \Delta P)/2$ (en atm), μ : la viscosité du fluide (en cP), et L : la longueur de l'échantillon (en cm).

En faisant varier avec la vanne la pression P_1 , on obtient différentes valeurs du débit d'air q qui permettent de tracer la courbe $Q = f(\Delta P.P_m)$ représentée figure (FIG. 3.3).

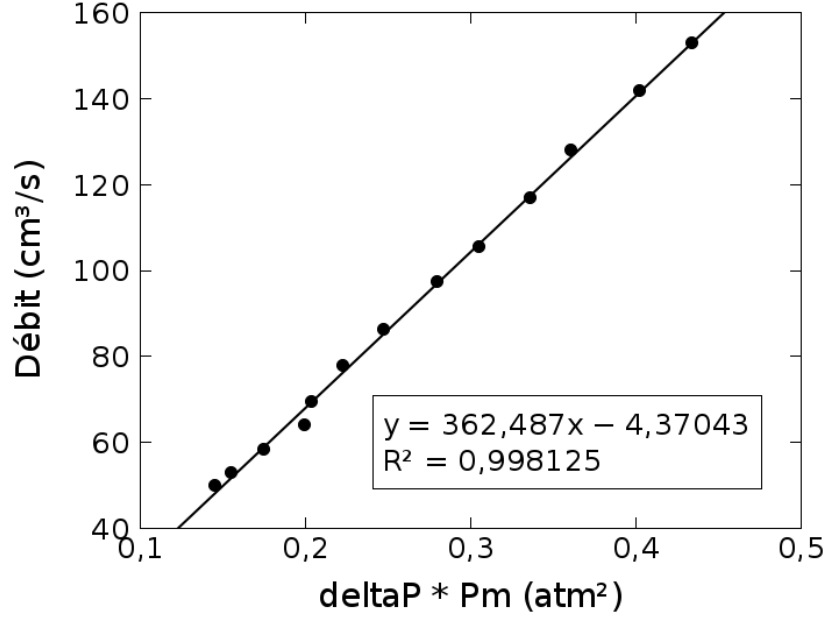


FIGURE 3.3 – Débit d'air en fonction du produit de la pression moyenne dans l'échantillon M1 par le gradient de pression aux extrémités de celui-ci.

Les points ainsi tracés s'alignent sur une droite avec une très bonne corrélation (cf. fig. 3.3). Ainsi, en nommant α la pente de la droite de régression, on a :

$$k = \alpha \frac{P_0 \mu L}{A} , \quad (3.4)$$

\Rightarrow

$$k = 362,487 \times \frac{1 \times 0,0183 \times 19,6}{5^2 \times \pi} \simeq 1,66 D . \quad (3.5)$$

L'échantillon de calcaire de Saint-Maximin M1 ($L = 19,6 \text{ cm}$, $\Phi = 10 \text{ cm}$) a donc une perméabilité absolue à l'air ($\mu = 0,0183 \text{ cP}$) de $1,66 D$.

On peut évaluer au premier ordre la précision des mesures de perméabilité à l'air présentées dans cette étude. La précision de mesure est de $\pm 2.10^{-3} \text{ atm}$ pour la mesure de ΔP , de $\pm 2\%$ pour le débit, de $\pm 2.10^{-3} \text{ atm}$ pour la mesure de la pression atmosphérique et la mesure de la pression moyenne, de $\pm 5.10^{-2} \text{ cm}$ pour la longueur, et de $\pm 1.10^{-1} \text{ cm}^2$ pour la section.

Les erreurs sur le débit et les pressions donnent une erreur relative d'environ $\pm 4\%$ pour la

pente α (cf. équation 3.4).

On exprime ainsi l'erreur relative sur la perméabilité absolue à l'air k :

$$\left| \frac{\Delta k}{k} \right| = \left| \frac{\Delta \alpha}{\alpha} \right| + \left| \frac{\Delta P_0}{P_0} \right| + \left| \frac{\Delta L}{L} \right| + \left| \frac{\Delta A}{A} \right| = 4\% + 0,2\% + 0,2\% + 0,1\% = 4,5\% \quad (3.6)$$

Ainsi, dans la situation la plus défavorable, la précision sur la mesure de perméabilité à l'air est de 5%.

3.1.2.3 Perméabilité à l'eau

Le macroperméamètre permet également de mesurer la perméabilité absolue à l'eau des échantillons. L'eau étant incompressible, cette mesure est d'autant plus simple. La valeur s'obtient directement à partir de l'équation de Darcy (3.2). Après avoir saturé l'échantillon avec de l'eau, sous vide, puis en ouvrant le robinet d'arrivée d'eau, on établit un gradient de pression grâce à un récipient contenant de l'eau mis à une hauteur connue. On fait circuler l'eau à travers l'échantillon, l'autre extrémité étant à la pression atmosphérique (robinet ouvert). Une fois le régime permanent du débit atteint, on mesure ce débit de sortie. En ramenant la hauteur de la colonne d'eau à un gradient de pression (en *atm*) on obtient directement la perméabilité (en *D*).

La précision sur les valeurs de perméabilité à l'eau obtenues par cette méthode est de 5%, comme pour la perméabilité absolue à l'air (cf. équation 3.6).

3.1.2.4 Déplacements miscibles

On peut également utiliser le perméamètre macroscopique pour effectuer un déplacement miscible dans l'échantillon. Il s'agit de remplacer un fluide par un autre avec lequel il est miscible, et de salinité différente. Ainsi, on peut tracer la courbe de la conductivité électrique de l'échantillon (ou du fluide sortant) en fonction du volume du deuxième fluide injecté. Cette courbe nous informe sur l'existence de chemins préférentiels au sein de l'échantillon. On peut ainsi accéder à l'hétérogénéité de la roche.

La figure (FIG. 3.4) montre la courbe dite de déplacement miscible, représentant la conductivité en fonction du volume de fluide injecté, et les 3 régimes importants illustrés par l'avancée des fluides dans un échantillon.

Le premier régime est la phase où l'eau salée progresse au sein de l'échantillon, mais n'a pas encore atteint sa sortie. La conductivité de la roche mesurée entre ses deux extrémités reste faible et n'est pas encore fortement affectée par l'eau salée. Dès que la solution salée atteint l'électrode

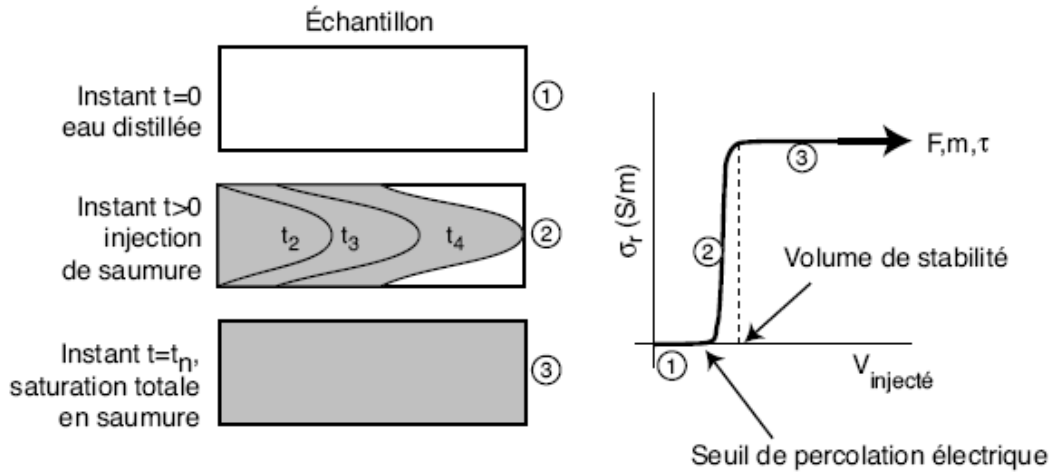


FIGURE 3.4 – Ces schémas représentent l'avancée d'un front plus conducteur (saumure) dans un échantillon saturé d'eau. En étudiant la courbe de la conductivité en fonction du volume de saumure injecté, on peut repérer le seuil de percolation électrique (ou de percée), lorsque le premier chemin atteint l'extrémité de l'échantillon.

de sortie, on observe un saut de la conductivité électrique de l'échantillon. C'est ce que l'on appelle le seuil de percolation électrique, qui dépend du temps nécessaire à un fluide injecté pour traverser l'échantillon, et détermine le début du second régime. Le troisième régime commence quand la conductivité électrique de la roche devient stable, c'est à dire quand l'échantillon est saturé totalement d'eau salée. Le volume de solution salée nécessaire pour obtenir ce palier est appelé le volume de stabilité.

Selon l'existence ou non de chemins de circulation préférentiels au sein de l'échantillon, les courbes de déplacements miscibles ont un profil différent, comme on peut l'observer sur les figures 3.4 et 3.5. La courbe de déplacement miscible de l'échantillon représentait à gauche figure 3.5 présentera une pente très raide avec un seuil de percolation assez tardif et un volume de stabilité assez rapidement atteint. Inversement, pour un échantillon plus hétérogène (cf. figure 3.5 à droite), le seuil de percolation sera vite atteint, à cause de l'existence de chemins de circulation préférentielle, puis la pente sera plus douce et le volume de stabilité atteint plus tard.

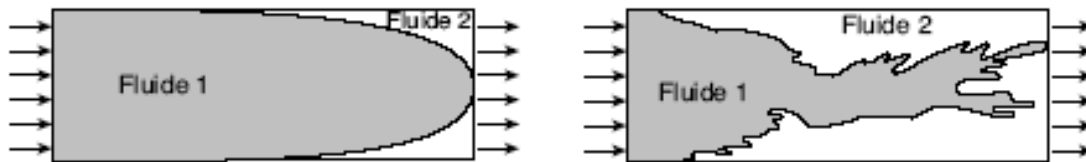


FIGURE 3.5 – Différence d'avancée d'un front d'eau salée dans deux échantillons d'hétérogénéité différente saturés d'eau douce.

Par ailleurs, la valeur de la conductivité électrique de la roche, atteinte après un volume injecté supérieur au volume de stabilité, donne accès au facteur de formation électrique F de la

roche, connaissant la conductivité du fluide (à condition que $\sigma_{fluide} \gg \sigma_{roche}$). Cette grandeur intrinsèque est définie comme le rapport de la conductivité du fluide et de celle de la roche saturée. Elle caractérise la géométrie du réseau poreux emprunté par le fluide conducteur.

3.1.3 Etude des propriétés sismiques

La modification de la porosité de la roche lors de l'injection d'un fluide réactif va changer la densité totale de l'échantillon étudié. Lors d'une réaction de dissolution, la proportion de la roche contenant du fluide va augmenter au détriment de la matrice. La propagation d'ondes sismiques à travers ce milieu s'en trouverait automatiquement altérée. Les ondes de compression (ondes P) sont très fortement ralenties par le fluide, tandis que les ondes de cisaillement (ondes S) ne s'y propagent pas. Une méthode de mesure par transmission de la vitesse et de l'atténuation des ondes sismiques à travers la roche étudiée au cours de la réaction de dissolution, mais également avant et après les expériences, permet donc de quantifier les changements de porosité induits par l'injection de CO_2 .

3.1.3.1 Vitesse et atténuation des ondes P et S

La méthode expérimentale utilisée pour mesurer ces grandeurs est une méthode par transmission de pulse (Birch, 1960 ; Zamora *et al.*, 1994 ; Rasolofosaon et Zinszner, 2002 ; Gong, 2005). Le dispositif employé pour réaliser ces mesures est composé de deux transducteurs piézoélectriques P ou S de fréquence $1MHz$ (respectivement Panametrics *V103SB* et *V153SB*), et d'un générateur de pulse Panametrics *5055PR*. Pour chaque mesure, le premier transducteur assure la fonction d'émetteur, et l'autre la fonction de récepteur. Ils sont couplés à l'échantillon par un système de ressorts (permettant d'obtenir un couplage reproductible) et l'usage d'un couplant mécanique (cf. FIG. 3.6). Le pulse émis est réceptionné par le second transducteur selon la géométrie voulue et converti en un signal électrique que l'on peut acquérir grâce à un oscilloscope numérique Agilent piloté par ordinateur. En mesurant ensuite sur la trace du signal le temps écoulé entre l'émission et l'arrivée de l'onde P ou S, et connaissant précisément la dimension de l'échantillon entre les transducteurs, on peut calculer la vitesse de propagation de l'onde dans le milieu. Le traitement des signaux acquis lors de ces expériences permet d'obtenir aussi une valeur de l'atténuation.

Ainsi, en déplaçant les transducteurs le long de l'échantillon et en mesurant précisément le diamètre de celui-ci en tout point de mesure, on obtient un profil de vitesses de l'échantillon.

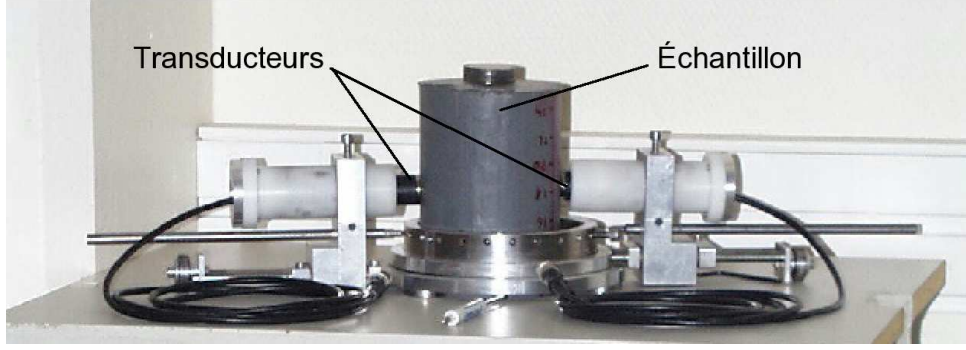


FIGURE 3.6 – *Dispositif de mesure des ondes P et S. (Ici débranché.)*

3.1.3.2 Précision de la mesure de vitesse des ondes sismiques

D'après la méthode expérimentale, on peut estimer la précision de ces mesures de vitesse, par :

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta t}{t} \quad , \quad (3.7)$$

avec V la vitesse de l'onde, D le diamètre de l'échantillon, et t le temps de vol de l'onde entre l'émission et la réception déterminé par pointé d'impétus.

Cette méthode de pointé d'impétus sur oscilloscope numérique permet d'avoir une bonne précision sur le temps de vol, inférieure à $\pm 100 \text{ ns}$ (Rasolofosaon et Zinszner, 2002 ; Gong, 2005). À ceci peut s'ajouter une dispersion statistique, provenant par exemple du couplage mécanique variable entre la roche et les transducteurs piézométriques. On verra lors des mesures que cette différence de couplage peut influencer l'amplitude, mais pas le temps de vol. L'erreur absolue sur le diamètre de l'échantillon, mesuré au pied à coulisse pour chaque position d'acquisition de vitesse, est de $\pm 0,1 \text{ mm}$, pour un diamètre de l'ordre de 10 cm . Ainsi, dans le cas des ondes P, qui ont un temps de vol de l'ordre de 30 ms , l'erreur relative sur la vitesse calculée au premier ordre est de :

$$\left| \frac{\Delta V_p}{V_p} \right| = \left| \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta t}{t} \right| = \left| \frac{0,1 \cdot 10^{-3}}{10 \cdot 10^{-2}} + \frac{100 \cdot 10^{-9}}{30 \cdot 10^{-6}} \right| \simeq 0,43\% \quad . \quad (3.8)$$

Enfin, on s'affranchit d'une possible erreur systématique en ne raisonnant qu'en vitesses relatives, sans tirer de conclusions sur les valeurs de vitesses absolues obtenues par cette méthode.

Ainsi, dans la situation la plus défavorable, on obtient une précision de l'ordre de $\pm 0,5\%$ pour V_p en majorant l'erreur obtenue par l'équation 3.8.

3.1.3.3 Précision de la mesure d'amplitude des ondes sismiques

Les erreurs relatives pour les mesures d'amplitudes sont calculées pour chaque point séparément. Chaque amplitude A est une différence de tension crête à crête lue sur l'oscilloscope numérique, exprimée en Volts (V). La précision de la lecture entraîne une erreur de $\pm 10 \text{ mV}$ sur la différence, soit une erreur absolue « globale » de $\pm 20 \text{ mV}$ en prenant la même valeur pour l'incertitude liée à la dispersion statistique liée au couplage mécanique, et évoquée partie 3.1.3.2. Ainsi, l'erreur relative sur le rapport d'amplitudes, grandeur que nous utiliserons pour discuter l'avancée du front de dissolution dans la partie 4.5, pour chaque mesure du profil de $S7$ durant l'injection de CO_2 est de :

$$\left| \frac{\Delta \left(\frac{A}{A_0} \right)}{\frac{A}{A_0}} \right| = \left| \frac{\Delta A}{A} \right| + \left| \frac{\Delta A_0}{A_0} \right| = \left| \frac{0,02}{A} \right| + \left| \frac{0,02}{A_0} \right| . \quad (3.9)$$

3.2 Expériences de percolation réactive en circuit ouvert

Après avoir caractérisé précisément les échantillons grâce aux méthodes décrites dans les sections précédentes, on procède aux expériences de suivi d'injection de fluides réactifs.

L'objectif de ces expériences est de modifier les propriétés hydrauliques d'échantillons rocheux par dissolution ou précipitation de calcite, et de quantifier les effets de ces changements sur les observables géophysiques. Ainsi, la mesure en temps réel des propriétés physicochimiques des échantillons rocheux et des fluides sortant de l'échantillon, lors d'une injection de fluide réactif, peut permettre d'étudier la faisabilité d'un suivi temporel, par méthodes géophysiques de surface, d'un site de séquestration minérale du CO_2 .

Le schéma de la figure 3.7 représente le montage utilisé pour les expériences de dissolution. La figure 3.8 présente une photographie de ce dispositif. L'échantillon cylindrique (de 10 cm de diamètre et quelques dizaines de cm de longueur) est disposé au milieu du dispositif, maintenu entre deux électrodes en inox permettant de mesurer sa conductivité électrique. La face latérale des échantillons est recouverte d'une résine étanche (araldite), afin que le fluide ne puisse circuler qu'entre ses deux faces de base. Toutes les jonctions du montage sont étanchéifiées.

En amont et en aval de la roche sont disposés deux capteurs de pression (Ashcroft KXD), permettant de mesurer les pressions du fluide à l'entrée (P_1) et à la sortie (P_2) de l'échantillon. Le fluide provient d'un réservoir en amont du montage, et est injecté à débit constant grâce à une pompe (Gilson Minipuls 3). Le débit est mesuré grâce à un débitmètre à bille (Brooks Sho-Rate) disposé à la sortie de la pompe.

Connaissant à tout moment le débit et la pression aux deux bornes de l'échantillon, on peut

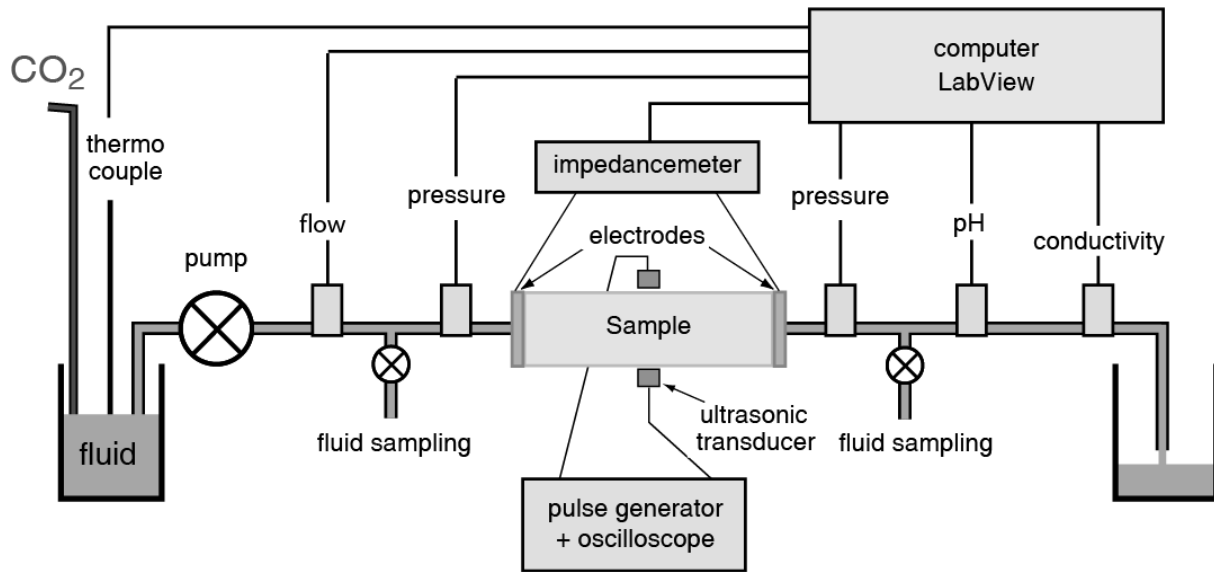


FIGURE 3.7 – Schéma de montage du dispositif d'injection de fluides en échantillons décimétriques.

calculer en continu la perméabilité absolue de la roche grâce à la loi de Darcy.

Les paramètres mesurés en ligne pendant l'expérience sont :

- le pH, mesuré grâce à une électrode en ligne (Bioblock Scientific) et un pHmètre (Consort C931),
- la conductivité du fluide, grâce à une cellule en ligne (WTW Tetracon DU T) et un conductimètre (WTW inoLab cond 730),
- la conductivité de la roche, grâce à un impédancemètre HP4263A,
- la température de l'air.

Les données provenant de ces différents appareils sont enregistrées grâce à une carte d'acquisition de 20 canaux (Keithley 7708) installée dans un voltmètre numérique (Keithley 2701). L'acquisition est informatisée grâce à un programme LabView de notre conception.

Durant les expériences, des prélèvements de fluides, après percolation dans l'échantillon, ont été effectués à intervalles de temps réguliers, permettant d'obtenir l'alcalinité et la concentration des différents éléments chimiques de la solution, notamment $[Ca^{2+}]$. La composition de la solution injectée dans l'échantillon est aussi contrôlée régulièrement.

Nous avons donc fait circuler différentes solutions à travers les échantillons tout en contrôlant les paramètres physico-chimiques de la roche et du fluide. Quatre types de fluides ont été utilisés pour ces expériences :

- de l'eau distillée, permettant de rincer les échantillons,
- de l'eau légèrement salée ($[NaCl] = 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$), qui permet de travailler à force ionique fixée, et de faire un "témoin" pour les injections suivantes avec CO_2 ,

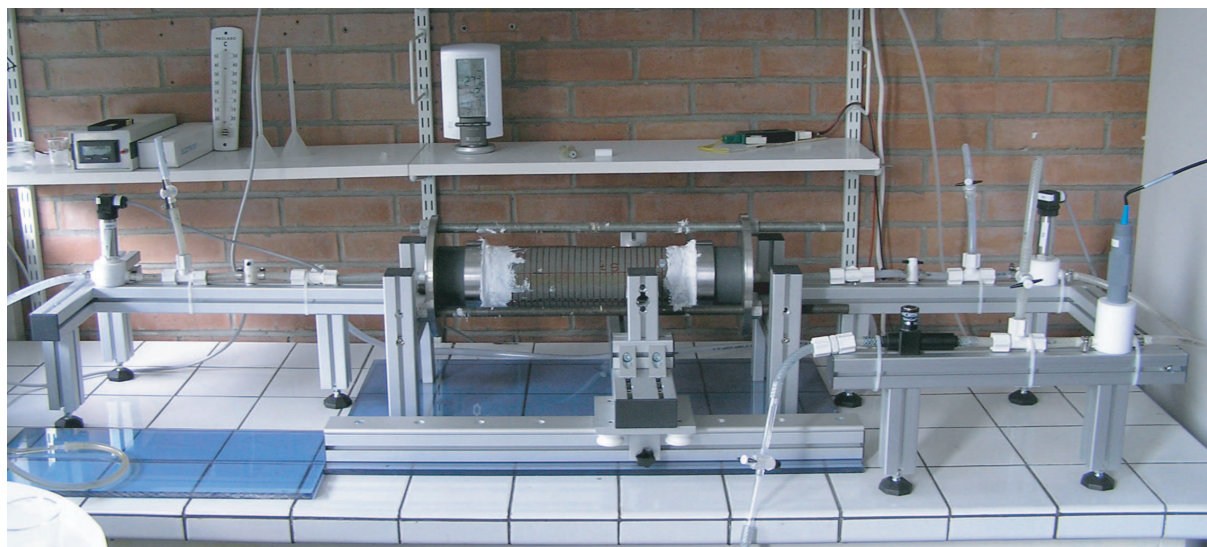


FIGURE 3.8 – Photographie du dispositif d'injection de fluides en échantillons décimétriques et de suivi multi-paramètres.

- de l'eau salée de même salinité et saturée en CO_2 ($pCO_2 = 1 \text{ atm}$, $pH \simeq 4$), afin de quantifier les effets spécifiques à une injection de CO_2 ,
- de l'eau distillée saturée en CO_2 , pour observer l'effet de la force ionique sur les réactions de dissolution-précipitation de calcite.

La figure 3.9 présente la chronologie des deux séries d'expériences réalisées sur les échantillons décimétriques de calcaire des Estailades (S7) et de calcaire de Saint-Maximin (M1), dont la caractérisation est présentée paragraphe 4.1.

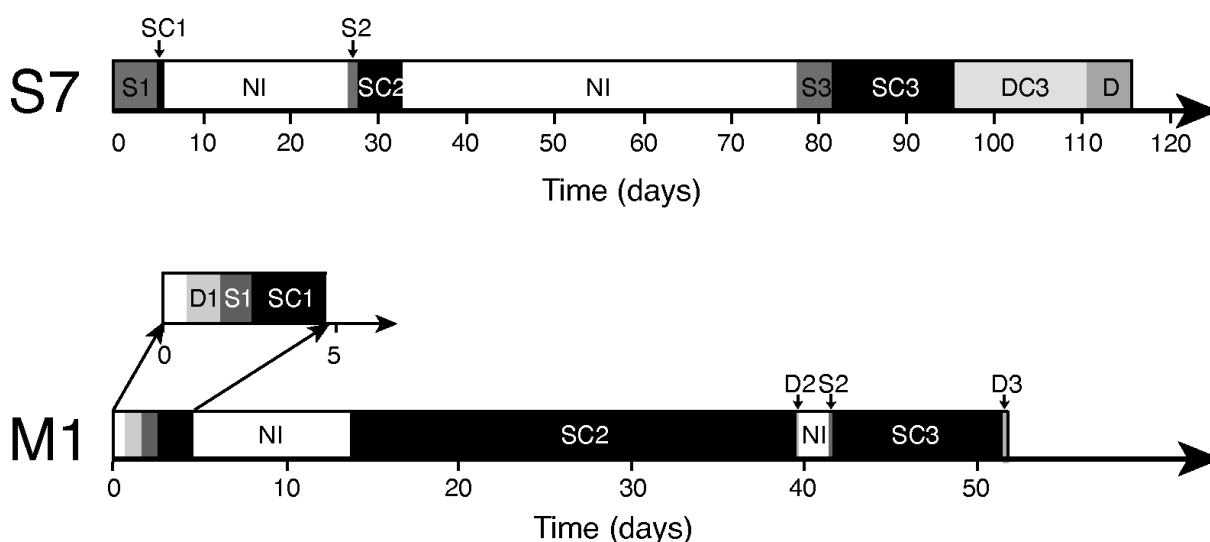


FIGURE 3.9 – Chronologie des expériences d'injection de fluide dans les échantillons de calcaire des Estailades (S7) (en haut) et de Saint-Maximin (M1) (en bas). La lettre S correspond à une injection de solution salée, la lettre D à une injection d'eau distillée, et la lettre C à un enrichissement du fluide en CO_2 , à $pCO_2 = 1 \text{ atm}$.

Les interruptions correspondent à des arrêts dûs à des raisons diverses inhérentes au type de dispositif et à la durée des expériences (contraintes liées au circuit ouvert, coupures d'eau ou de courant, blocus du campus...). Dans cette thèse, nous allons principalement nous intéresser aux injections *SC3* et *DC3* pour l'échantillon S7 (débit $Q = 5 \text{ ml.min}^{-1}$) et *SC3* pour l'échantillon M1 (débit $Q = 10 \text{ ml.min}^{-1}$), qui sont celles qui ont provoqué à chaque fois la modification la plus importante de la structure de la roche.

Ainsi, pendant ces injections, les paramètres physico-chimiques du fluide et de la roche sont mesurés en continu : conductivités du fluide et de la roche, perméabilité de l'échantillon, pH et alcalinité du fluide, température, débit, et évolution de la composition chimique du fluide. L'alcalinité est la capacité d'une eau à neutraliser les acides forts, c'est donc la somme des bases actives du système (Vialle, 2008). De plus, des mesures régulières de vitesses d'ondes P et S sont faites entre les différentes phases de chaque expérience. Ainsi, toute modification conséquente de l'espace poral, due aux réactions de dissolution ou précipitation de la calcite, peut être mise en évidence.

Après expérience, les échantillons sont à nouveau caractérisés, avec les mêmes techniques utilisées lors de la caractérisation initiale, pour quantifier précisément l'effet des réactions provoquées par l'injection de CO_2 sur la structure de la roche.

Chapitre 4

Résultats

Ce chapitre présente les résultats obtenus lors des expériences d'injection d'eau légèrement salée et saturée en CO_2 présentées dans la partie 3.2, pour deux échantillons de calcaire : le calcaire des Estaillades (*S7*) et celui de Saint-Maximin (*M1*).

Les résultats présentés ici ont été obtenus en collaboration avec ma collègue Stéphanie Vialle (Vialle, 2008), qui s'est intéressée plus particulièrement aux aspects physico-chimiques de cette étude.

4.1 Caractérisation des échantillons avant expérience

Ces expériences ont été menées à terme pour un échantillon de calcaire des Estaillades et pour un échantillon de calcaire de St-Maximin. Ces deux échantillons ont été soumis avant expérience à un volet complet de caractérisation, selon la méthodologie présentée chapitre 3. Les caractéristiques principales de ces deux calcaires, obtenues lors de cette caractérisation, sont regroupées dans le tableau (4.1).

Les échantillons de calcaire des Estaillades (*S7*) et de Saint-Maximin (*M1*) se présentent sous la forme de carottes de 10 *cm* de diamètre mesurant respectivement 34,7 *cm* et 16,5 *cm* de longueur. Cette grande dimension, par rapport aux échantillons classiquement choisis pour ce type d'expériences, présente le double avantage d'être supérieure à l'échelle d'homogénéisation de la roche et de permettre la réalisation de profils de vitesses et amplitudes des ondes P et S le long de l'échantillon pendant les expériences, comme nous le verrons par la suite. Par ailleurs, cette taille permet également d'étudier l'effet des hétérogénéités de la roche.

Les échantillons ont été enduits d'une résine étanche sur toute leur longueur, permettant de conserver l'intégrité des roches et d'assurer une circulation de fluides sans fuites.

Nom de l'échantillon	Calcaire des Estailades (S7)	Calcaire de St.Maximin (M1)
Caractéristiques	Calcaire bioclastique à granulométrie régulière (500 μm à 1 mm). Présence d'algues. Abondante macroporosité intergranulaire, parfois obstruée par des microcristaux de calcite (micrite).	Calcaire bioclastique. Macroporosité très abondante.
Porosité	0,286	0,366
Perméabilité à l'eau (D)	0,12	1,69
Perméabilité à l'air (D)	0,12	1,66
Facteur de formation électrique	15,7	6
Coefficient de cimentation	2,2	1,8
Longueur (cm)	34,7	16,5

TABLE 4.1 – *Présentation des échantillons décimétriques utilisés pour les expériences en laboratoire*

L'échantillon S7 est taillé dans un calcaire bioclastique. Sa porosité, obtenue par triple pesée et porosimétrie par injection de mercure, est de 28,6%, et sa perméabilité absolue à l'air comme à l'eau est de 120 mD . La lame mince présentée sur la figure 4.1 permet de visualiser sa porosité, après injection d'une résine rouge dans l'échantillon. C'est principalement l'importante porosité intergranulaire qui y est visible. L'histogramme de distribution des rayons d'accès aux pores montre une distribution de porosité bimodale marquée, avec des rayons d'accès compris entre 5 nm et 100 μm . Le maximum de la distribution est observé pour une valeur de rayon d'accès avoisinant les 9 μm , tandis que la valeur du mode secondaire des rayons d'accès se situe autour de 0.2 μm .

L'échantillon M1 est de plus petite dimension (10 cm de diamètre et 16,5 cm de longueur). Il est taillé dans un calcaire bioclastique d'une porosité de 36,6%, et sa perméabilité absolue à l'air comme à l'eau est de 1,7 D . La lame mince présentée sur la figure 4.1 permet de visualiser sa porosité, après injection d'une résine bleue dans l'échantillon. L'histogramme de distribution des rayons d'accès aux pores montre que cet échantillon possède également une distribution d'allure bimodale, mais bien plus homogène. Cette distribution est comprise entre 10 nm et 100 μm . Le mode principal se situe vers des rayons d'accès de 12 μm , le mode secondaire se situe vers 0.2 μm . La différence principale entre les deux échantillons vient de l'aspect général « moins creusé » de cette distribution, plus homogène, avec des valeurs entre les modes plus fréquentes que pour l'échantillon S7.

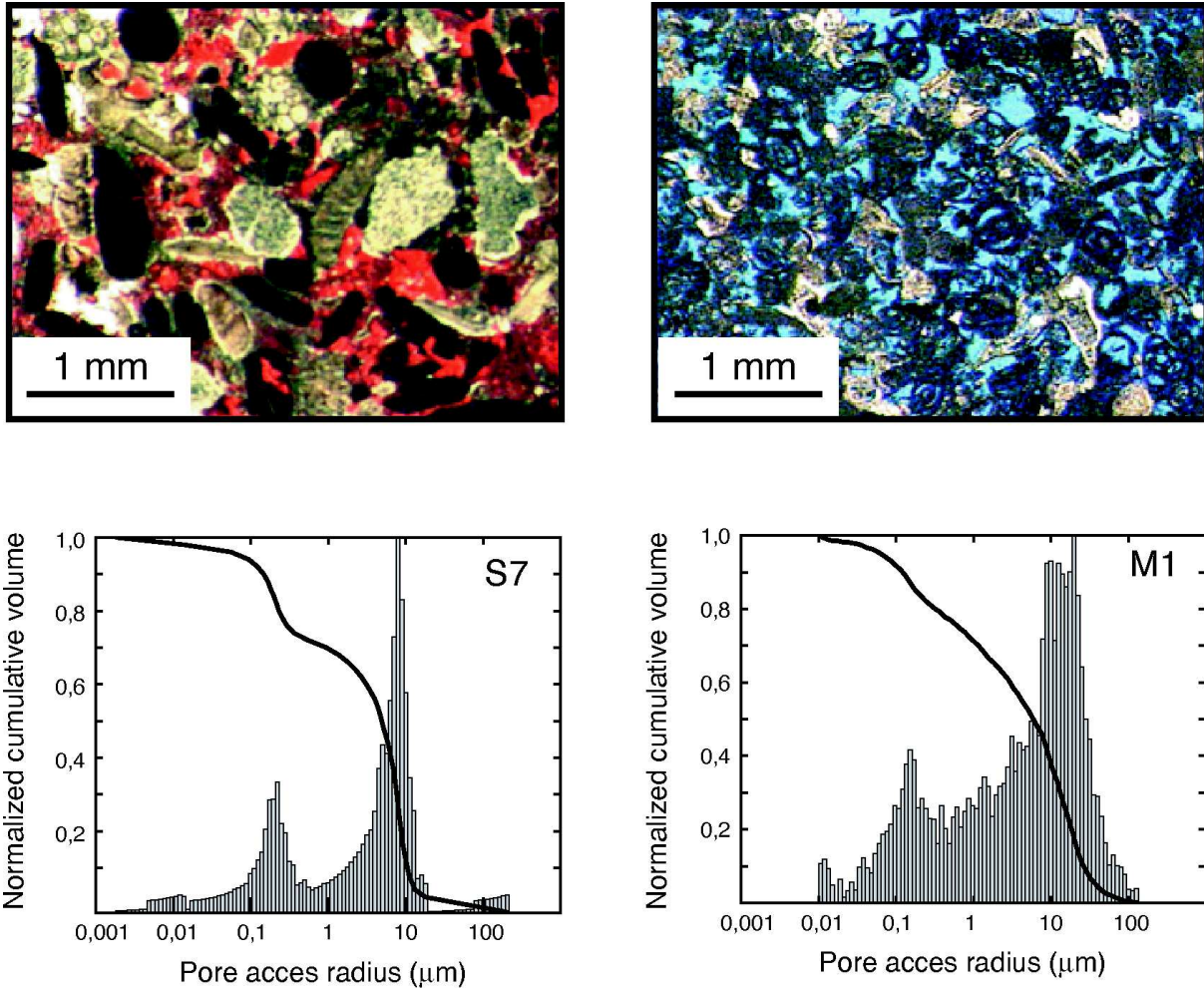


FIGURE 4.1 – *Caractéristiques des échantillons de calcaire des Estailades (S7) et de Saint Maximin (M1). Lames minces saturées de résine colorée, et distributions des rayons d'accès aux pores obtenues par porosimétrie par injection de mercure.*

Ces deux échantillons sont donc des calcaires bioclastiques, ayant une composition minéralogique similaire et présentant une distribution de rayons d'accès aux pores plus ou moins bimodale. La proportion importante de grands rayons d'accès aux pores (10-100 microns) du calcaire de Saint-Maximin explique la différence de perméabilité d'un ordre de grandeur entre les deux roches.

La figure 4.2 présente la densité radiologique et les vitesses des ondes P et S mesurées le long de chaque échantillon à sec. On voit sur les profils de densité radiologique que l'échantillon S7 de calcaire des Estailades a un profil particulièrement hétérogène à l'échelle de l'échantillon, avec des variations relatives de l'ordre de 10%. À l'opposé, l'échantillon M1 de calcaire de Saint-Maximin, d'un niveau global de densité radiologique inférieur, présente un profil particulièrement homogène, avec des variations relatives inférieures à 5%. La bonne corrélation entre les courbes de vitesses et la courbe de densité radiologique pour chaque échantillon (figure 4.2) permet de vérifier que la mesure des vitesses sismiques, l'observable géophysique qui nous intéresse ici,

donne accès à la même information sur les variations locales de porosité dans la roche que la tomodynamométrie (TDM) au scanner X. En effet, ces deux méthodes différentes, fondées sur les propriétés d'atténuation et d'absorption des ondes par l'air et la matière constituant la roche, nous renseignent sur l'hétérogénéité du milieu poreux. Il est intéressant de noter que si ces courbes donnent toutes deux une information sur la porosité, les processus physiques permettant leur obtention n'interviennent absolument pas à la même échelle. En effet, les piézomètres permettant la mesure de vitesse des ondes P ont une largeur d'1 *cm* donnant des mesures moyennées sur des tranches d'échantillon de cette épaisseur, tandis que le scanner à rayons X donne des tranches de tomographie millimétriques, avec un voxel de mesure de 90 μm (Le Guen, 2006). La bonne correspondance entre les variations de ces deux courbes est d'autant plus appréciable.

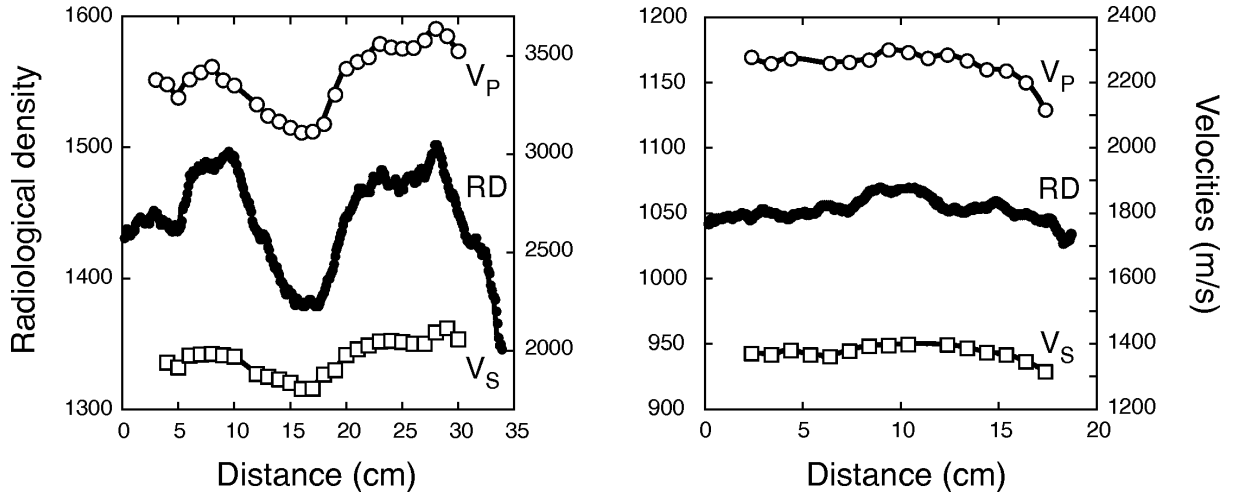


FIGURE 4.2 – *Profils d'atténuation des rayons X (densité radiologique) obtenus par tomodynamométrie, et profils de vitesse des ondes P et S mesurés par transmission de pulse et pointé d'impétus avant expérience. Échantillons à l'état sec.*

L'hétérogénéité initiale différente des deux échantillons est également mise en évidence par les courbes de déplacement miscible de la figure 4.3.

Chacune de ces courbes correspond à l'évolution de la conductivité électrique de la roche, normalisée à sa valeur finale, lors de l'injection d'une solution salée dans l'échantillon initialement saturée d'eau douce. Comme expliqué paragraphe 3.1.2.4, le profil de la courbe ainsi obtenue fournit des informations sur l'hétérogénéité du milieu poreux en question. Ici, la figure 4.3 montre que l'échantillon *S7*, avec son seuil de percolation plus bas ($S_{perco}(S7) = 0,3$; $S_{perco}(M1) = 0,7$) et sa pente plus douce, comprend initialement d'avantage de chemins de circulation préférentielle que l'échantillon *M1*, au front plus raide, et au volume de stabilité inférieur ($V_{stab}(S7) = 2,2$; $V_{stab}(M1) = 1,7$). De plus, ces courbes de déplacements miscibles permettent de calculer le facteur de formation initial de la roche pour chaque échantillon. Les valeurs de F obtenues sont celles présentées dans le tableau 4.1, soit $F_{S7} = 15,7$ et $F_{M1} = 6$.

Effectuer le suivi géophysique des expériences de percolation réactive sur ces deux échantillons nous permet donc d'observer l'effet de l'hétérogénéité sur les observables.

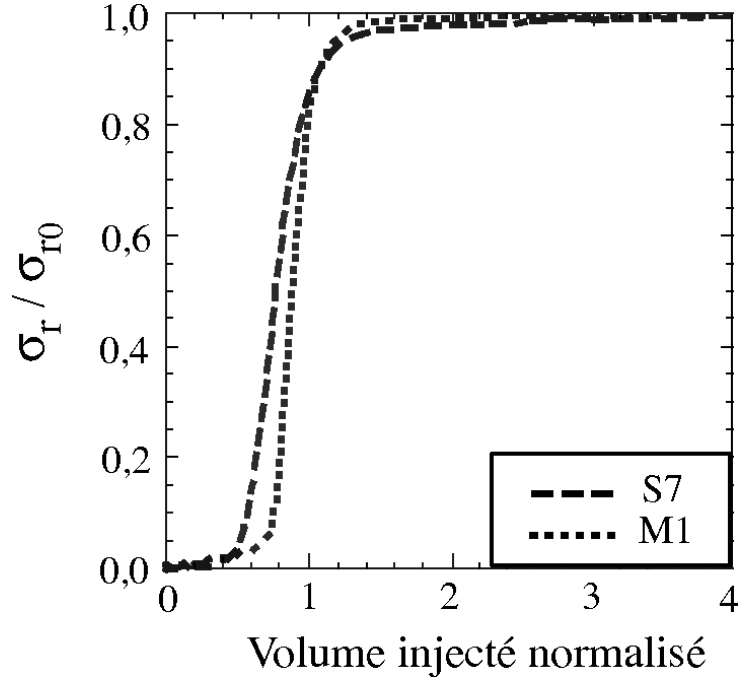


FIGURE 4.3 – *Déplacements miscibles des deux échantillons de calcaire des Estailades (S7) et de Saint-Maximin (M1) avant expérience.*

4.2 Suivis chimique, hydraulique, et électrique de l'injection de CO_2

Cette partie décrit le suivi des expériences de percolation réactive réalisées sur les deux échantillons présentés précédemment grâce aux prélèvements chimiques, à la mesure de la conductivité électrique de la roche et du fluide, ainsi que grâce à la mesure simultanée de la pression en amont et en aval de l'échantillon et du débit. Ces dernières grandeurs donnent accès à la perméabilité de l'échantillon en temps réel. Les résultats obtenus lors des phases de circulation SC1 et SC2 (cf. figure 3.9) sont présentés et discutés dans la thèse de Stéphanie Vialle (Vialle, 2008).

4.2.1 Calcaire des Estailades

La courbe de la figure 4.4 a) présente l'évolution de l'alcalinité, de la concentration en ions Ca^{2+} , du pH et de la conductivité du fluide. On peut observer que, comme pour les périodes de circulation de fluide SC1 et SC2, l'alcalinité et la concentration en ions Ca^{2+} , de valeurs très faibles avant l'injection du CO_2 , augmentent rapidement sous l'effet de l'arrivée du fluide acidifié par le CO_2 , pour se stabiliser respectivement autour de $1,8 \cdot 10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$ et $9 \cdot 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$,

connaissant une légère diminution tout au long des injections SC3 et DC3 de solutions saturées en CO_2 .

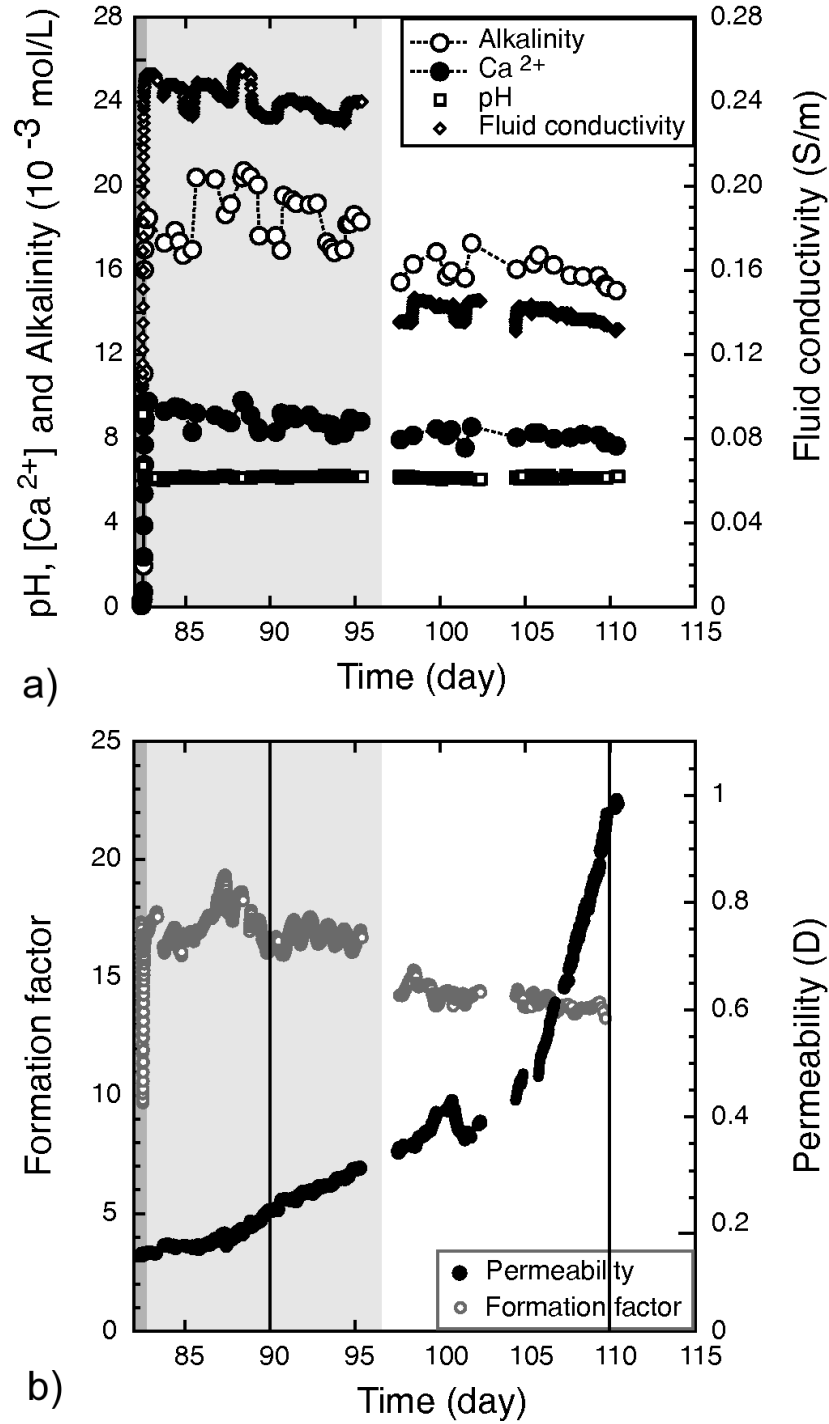


FIGURE 4.4 – a) Évolution, en fonction du temps, de l’alcalinité du fluide (cercles blanc), de sa concentration en ions Ca^{2+} (cercles noirs et pointillés), de son pH (carré blancs) et de sa conductivité électrique (losanges) en sortie de l’échantillon de calcaire des Estailades (S7) pendant les périodes SC3 et DC3. b) Évolution en fonction du temps de la perméabilité (en noir) et du facteur de formation électrique (en gris) de S7 pendant ces mêmes périodes. La conductivité électrique du fluide de sortie (losanges) varie au jour 17, le fluide injecté initialement enrichi de $10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$ de NaCl et saturé en CO_2 étant substitué par de l’eau distillée saturée en CO_2 .

Pendant cette même période, on observe que le pH se maintient à une valeur de 6 (aux variations initiales près), tandis que la conductivité électrique du fluide connaît deux plateaux faiblement décroissants. Le pH de la solution injectée est acide, avec une valeur de 4, et sa valeur en sortie de l'échantillon est tamponnée à 6 par les réactions chimiques opérant au sein de l'échantillon. La conductivité σ_f a ainsi tout d'abord une valeur comprise entre $0,26 \text{ S.m}^{-1}$ et $0,23 \text{ S.m}^{-1}$ durant l'injection SC3 d'eau salée enrichie en CO_2 , puis une valeur comprise entre $0,15 \text{ S.m}^{-1}$ et $0,13 \text{ S.m}^{-1}$ durant DC3.

La courbe de la figure 4.4 b) représente l'évolution de la perméabilité de l'échantillon *S7* pendant les mêmes périodes SC3 et DC3, ce qui correspond à un mois d'injection de solution saturée en CO_2 . On peut observer que la perméabilité augmente d'un ordre de grandeur pendant cette période, passant de 180 mD à 970 mD . Dans le même temps, le facteur de formation, de valeur initiale 16,8, commence par augmenter pendant les 5 premiers jours jusqu'à 19, puis diminue régulièrement. À la fin de l'expérience, sa valeur atteint 13,5. Les traits verticaux correspondent aux dates auxquelles sont effectuées les mesures de vitesse et d'amplitude des ondes sismiques présentées par la suite et servant de dates repères tout au long de cette étude.

Par ailleurs, ces analyses ont permis de calculer la masse totale de calcite dissoute, qui donne accès à une valeur moyenne de l'augmentation de la porosité de l'échantillon causée par la dissolution. En effet, connaissant la concentration en ions Ca^{2+} en sortie de l'échantillon au cours de l'expérience, le débit du fluide et le temps écoulé, on peut obtenir le nombre de moles de Ca^{2+} dissoutes, et donc la masse équivalente de calcite dissoute connaissant la masse volumique de la calcite, $M(\text{CaCO}_3) = 100 \text{ g.mol}^{-1}$. Ainsi, avec une quantité de calcium dissous équivalent à 189 g de carbonate de calcium entre le jour 75 et le jour 110, l'augmentation moyenne de porosité sur cette période a été estimée à environ 2,5%, selon la formule de l'équation 4.1.

$$\delta(\phi) = \phi_2 - \phi_1 = \frac{V_{\text{dissous}}}{V_{\text{total}}} = \frac{m_{\text{dissous}}}{\rho_{\text{calcite}} \cdot V_{\text{total}}} = 2,55\% \quad . \quad (4.1)$$

CALCUL DE L'ERREUR SUR L'ESTIMATION DE LA VARIATION DE LA POROSITÉ À PARTIR DES ANALYSES CHIMIQUES
D'après l'équation 4.1, l'erreur relative sur cette grandeur s'exprime grâce à la formule :

$$\left| \frac{\Delta\delta(\phi)}{\delta(\phi)} \right| = \left| \frac{\Delta m_{\text{dissous}}}{m_{\text{dissous}}} \right| + \left| \frac{\Delta V_{\text{total}}}{V_{\text{total}}} \right| \quad . \quad (4.2)$$

Si l'on prend une incertitude absolue $\Delta m_{\text{dissous}}$ de $\pm 5 \text{ g}$ pour la masse de calcite dissoute calculée grâce à la concentration en ions calcium en sortie d'échantillon et au débit d'injection (Vialle, 2008), on a une incertitude relative sur cette valeur inférieure à 3%. En prenant la même incertitude relative sur le volume initial de l'échantillon calculé grâce à la mesure de ses dimensions, on obtient une incertitude relative pour $\delta\phi$ de $\pm 6\%$, donc une incertitude absolue de 0,0015, donc inférieure à 0,002 dans le pire des cas.

Ainsi, la porosité de l'échantillon de calcaire des Estailades a augmenté de $(2,6 \pm 0,2\%)$ au cours des périodes S3, SC3 et DC3, soit 28 jours d'injection de CO_2 .

4.2.2 Calcaire de Saint-Maximin

Les figures 4.5 et 4.6 présentent les résultats obtenus lors des expériences de percolation réactive réalisées sur l'échantillon M1. La figure 4.5 présente les 40 premiers jours d'injection, dont les résultats sont discutés dans la thèse de Stéphanie Vialle (Vialle, 2008). Les traits pointillés verticaux correspondent aux dates auxquelles sont effectuées les mesures de vitesse et d'amplitude des ondes sismiques présentées par la suite.

On peut observer sur la figure 4.6 b) que la perméabilité augmente, passant de $1,7D$ à $45D$. On atteint, en fin d'expérience, la limite de résolution des capteurs de pression, avec un niveau de bruit rendant toute mesure impossible.

La figure 4.6 a) permet de suivre l'évolution du pH, de l'alcalinité, de la concentration en ions Ca^{2+} et de la conductivité électrique du fluide au cours de l'expérience. On remarque tout d'abord les variations des signaux au jour 42, lors de l'injection du fluide enrichi à 1 atm de pCO_2 dans l'échantillon initialement saturé d'eau distillée légèrement salée à $10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$. La conductivité électrique du fluide en sortie avait une valeur de $0,2 \text{ S.m}^{-1}$, et l'injection du fluide saturé en CO_2 provoque un saut de ce paramètre autour de $0,23 \text{ S.m}^{-1}$. Jusqu'au jour 50, la conductivité reste relativement stable autour de cette valeur. Dans le même temps, la concentration en ions Ca^{2+} et l'alcalinité se sont stabilisées respectivement à $8.10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ et $16.10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$, et le pH à 6. Après le jour 50 on observe une diminution marquée de ces quatre paramètres jusqu'à l'arrêt de l'expérience.

Dans la période de percolation comprise entre le jour 36, situé à quelques jours de la fin de la période de percolation SC2, et le jour 49, avant la diminution importante des paramètres du fluide observés en fin d'injection SC3, la mesure de la concentration en ions $[Ca^{2+}]$ nous permet d'estimer la quantité de calcite dissoute, et donc la variation moyenne de la porosité dans l'échantillon. Avec $57,6 \text{ g}$ de calcite dissoute durant cette période d'injection de fluide saturé en CO_2 , on peut évaluer l'augmentation de porosité de l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin sur cette période à $1,6 \pm 0,3\%$.

Les variations de porosité obtenues grâce à la concentration en ions Ca^{2+} pour les échantillons de calcaire des Estailades S7 et de Saint-Maximin M1 sont résumées dans le tableau 4.2. Ces variations sont la conséquence de la percolation réactive à travers l'échantillon S7 entre les jours référence 75 et 110, et à travers l'échantillon M1 durant la période comprise entre les jours 36 et 49.

Echantillon	$\delta\phi_{chim}$
Estailades	$+(2,6 \pm 0,2)\%$
Saint-Maximin	$+(1,6 \pm 0,3)\%$

TABLE 4.2 – Évolution de la porosité moyenne calculée à partir de la mesure des ions $[Ca^{2+}]$ dans la solution de sortie, pour les deux échantillons.

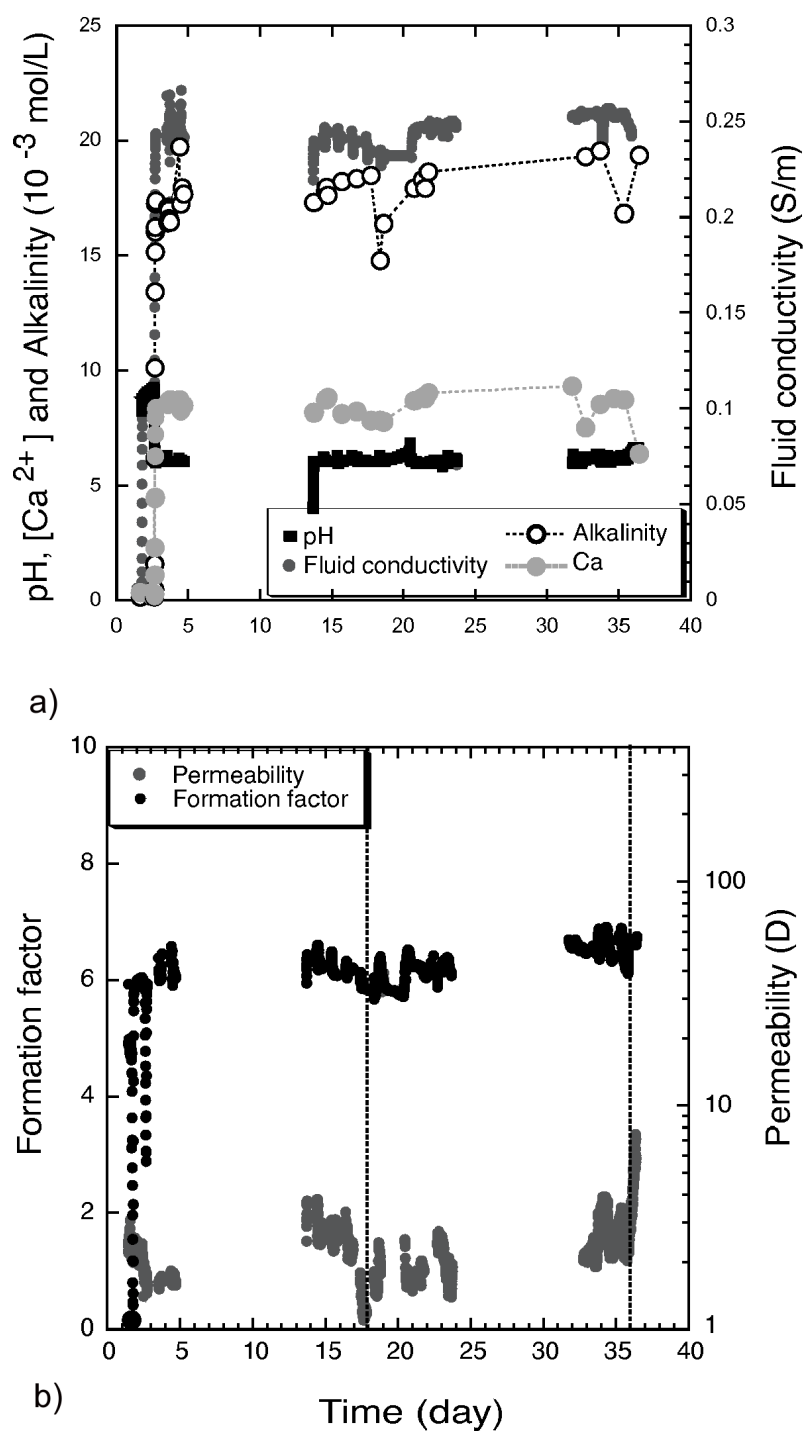


FIGURE 4.5 – a) Évolution de l'alcalinité, de la concentration en ions calcium, du pH et de la conductivité électrique de la solution à la sortie de l'échantillon au cours du temps pendant l'injection d'eau saturée en CO_2 (SC2) dans l'échantillon de calcaire de St-Maximin (M1). b) Évolution de la perméabilité et du facteur de formation électrique pendant l'injection (SC2) de CO_2 dans l'échantillon M1.

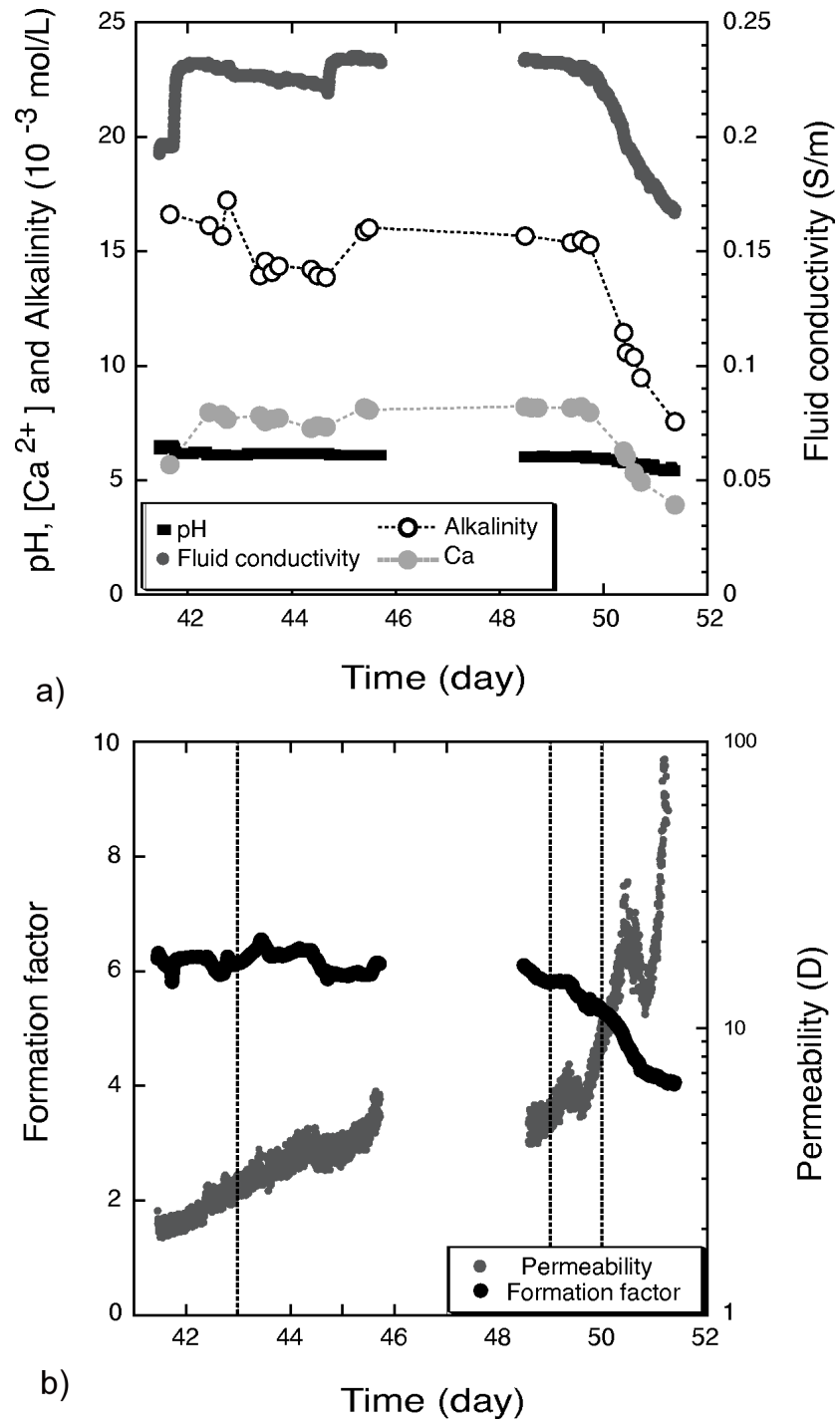
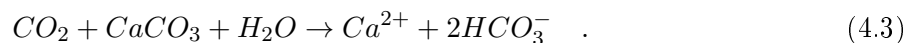


FIGURE 4.6 – a) Évolution de l'alcalinité, de la concentration en ions calcium, du pH et de la conductivité électrique de la solution à la sortie de l'échantillon au cours du temps pendant l'injection d'eau saturée en CO₂ (SC3) dans l'échantillon de calcaire de St-Maximin (M1). Le jour 42 correspond au début de l'injection de CO₂. b) Évolution de la perméabilité et du facteur de formation électrique pendant l'injection (SC3) de CO₂ dans l'échantillon M1.

4.2.3 Discussion

On peut observer sur les courbes de la figure 4.4 que pendant que la perméabilité de l'échantillon *S7* augmente d'un ordre de grandeur (de 180 *mD* à 970 *mD*), le facteur de formation électrique décroît et le pH reste stable. Cette stabilité du pH met en évidence l'existence d'un état stationnaire de la réaction de dissolution de la calcite. De plus, on peut noter que la valeur de l'alcalinité à tout moment est égale au double de la concentration en ions Ca^{2+} , ce qui est en accord avec la réaction de dissolution de la calcite :



Lors de cette réaction, un ion calcium Ca^{2+} est produit pour deux ions bicarbonates HCO_3^- , lesquels constituent au premier ordre l'alcalinité pour ce système.

La mesure de la quantité de calcium dissoute montre que la force ionique favorise, dans une certaine mesure, la dissolution de la calcite.

Le comportement observé en fin d'expérience pour l'échantillon M1 (figure 4.6) peut s'expliquer par un "perçage" de l'échantillon. En effet, si un chemin de circulation préférentielle atteint la face de sortie de l'échantillon, la perméabilité augmente de manière considérable, et le temps de résidence du fluide dans l'échantillon n'est pas suffisant pour atteindre l'état stationnaire chimique. Ainsi, le pH et la conductivité électrique du fluide s'en trouvent diminués, de même que la concentration en ions calcium et l'alcalinité, la dissolution étant moindre.

4.3 Le facteur de formation électrique

Connaissant la conductivité électrique du fluide et de la roche saturée, on a accès au facteur de formation électrique F , calculé en temps réel durant les expériences de percolation réactives, et tracé sur les figures 4.3 à 4.5 pour les deux échantillons de calcaire.

Cette grandeur peut être reliée à la porosité en utilisant la loi d'Archie (Archie, 1942) pour une roche saturée :

$$F = \phi^{-m} , \quad (4.4)$$

avec F le facteur de formation électrique de la roche, ϕ la porosité de l'échantillon, et m le facteur de cimentation de la roche.

Grâce à l'équation 4.4, on peut estimer la variation de porosité de la roche. Pour ce faire, nous faisons l'hypothèse que m ne varie pas au cours de la dissolution. Cette hypothèse est forte, sachant que ce paramètre pourrait varier lors de la dissolution. Cependant, la mesure de

la variation de porosité obtenue grâce à la concentration en ions Ca^{2+} nous permet de contrôler la variation de ce paramètre (cf. paragraphe 4.5.3).

On attribue les propriétés F_1 et ϕ_1 à l'échantillon en début d'expérience, F_2 et ϕ_2 en fin d'expérience. On cherche la variation de porosité, soit :

$$\phi_2 - \phi_1 = F_2^{-\frac{1}{m}} - F_1^{-\frac{1}{m}} \quad . \quad (4.5)$$

Ainsi, pour l'échantillon de calcaire des Estaillades, en considérant que $F_1 = 16,8$ en début d'injection, au jour 82, et $F_2 = 13,7$ (cf. figure) en fin d'expérience, au jour 110 et avec $m = 2,2$ (cf.), on obtient une variation de porosité de $\phi_2 - \phi_1 = 2,69\%$.

CALCUL DE L'ERREUR SUR L'ESTIMATION DE LA VARIATION DE LA POROSITÉ PAR MÉTHODE ÉLECTRIQUE
L'erreur sur cette valeur provient principalement de l'erreur faite sur les valeurs prises pour F_1 et F_2 , valeurs moyennes sur deux périodes de stabilité. On peut estimer raisonnablement connaître ces valeurs avec une précision de $\pm 0,1$. On détaille ensuite le calcul pour l'incertitude absolue sur les différences de porosité à partir de l'équation d'Archie 4.4.

$$|\Delta(\phi_2 - \phi_1)| = |\Delta(\phi_2)| + |\Delta(\phi_1)| \quad , \quad (4.6)$$

or,

$$F_i = \phi_i^{-m} \Rightarrow \left| \frac{\Delta F_i}{F_i} \right| = \left| \frac{m \Delta \phi_i}{\phi_i} \right| \quad , \quad (4.7)$$

d'où :

$$\Delta \phi_i = \frac{\phi_i \Delta F_i}{m F_i} \quad . \quad (4.8)$$

Ainsi, pour *S7*, d'après l'équation 4.6 :

$$\begin{aligned} |\Delta(\phi_2 - \phi_1)| &= |\Delta(\phi_2)| + |\Delta(\phi_1)| = \left| \frac{\phi_2 \Delta F_2}{m F_2} \right| + \left| \frac{\phi_1 \Delta F_1}{m F_1} \right| \quad , \\ &= 1.10^{-3} + 7,51.10^{-4} = 1,75.10^{-3} \quad . \end{aligned} \quad (4.9)$$

Ainsi, la variation de porosité engendrée en l'échantillon *S7* par 28 jours d'injection d'eau saturée en CO_2 est de $+ (2,7 \pm 0,2)\%$.

De même, pour l'échantillon de Saint-Maximin (avec $m = 1,8$ cf. partie 4.1), en considérant la zone stationnaire, avant le perçage de l'échantillon, avec $F_1 = 6,3$ au jour 36 et $F_2 = 5,8$ au jour 49 on obtient une augmentation de porosité entre ces dates de $(1,7 \pm 0,7)\%$.

Le tableau 4.3 résume ces valeurs de variation de la porosité obtenues par le facteur de formation électrique pour les deux échantillons.

	F_1	F_2	ϕ_1	ϕ_2	$\delta\phi_{elec}$
<i>S7</i>	$(16, 8 \pm 0, 1)$	$(13, 7 \pm 0, 1)$	$(0, 277 \pm 0, 001)$	$(0, 304 \pm 0, 001)$	$+ (2, 7 \pm 0, 2)\%$
<i>M1</i>	$(6, 3 \pm 0, 1)$	$(5, 8 \pm 0, 1)$	$(0, 360 \pm 0, 003)$	$(0, 377 \pm 0, 004)$	$+ (1, 7 \pm 0, 7)\%$

TABLE 4.3 – *Évolution de la porosité calculée par la mesure de l'évolution du facteur de formation électrique pour les deux échantillons, pendant les périodes d'injection de CO_2 SC2 et SC3 dans le cas de l'échantillon S7, et les jours 43 à 49 pour l'échantillon M1.*

On peut comparer ces valeurs aux valeurs obtenues à l'aide de la concentration en ions $[Ca^{2+}]$ présentées partie 4.2. Ces résultats sont représentés tableau 4.4. Les valeurs obtenues sont très satisfaisantes, équivalentes aux incertitudes près aux valeurs de porosité obtenues grâce à la concentration en calcium dans le fluide sortant.

Echantillon	$\delta\phi_{chim}$	$\delta\phi_{elec}$
Estailades	$+(2, 6 \pm 0, 2)\%$	$+ (2, 7 \pm 0, 2)\%$
Saint-Maximin	$+(1, 6 \pm 0, 3)\%$	$+ (1, 7 \pm 0, 7)\%$

TABLE 4.4 – *Évolution de la porosité calculée avec la concentration en Ca^{2+} et à l'aide du facteur de formation pour les deux échantillons de calcaire des Estailades et de Saint-Maximin.*

Les valeurs de variation de porosité obtenues grâce à l'étude du facteur de formation électrique dépendent de la validité de l'hypothèse faite concernant la constance des coefficients de cimentation au cours de la percolation réactive de fluide saturé en CO_2 pour les deux échantillons. La valeur du paramètre m en fin d'expérience peut se vérifier aisément en utilisant la porosité obtenue indépendamment par la quantité de calcite dissoute et par la loi d'Archie.

En utilisant les valeurs initiales du facteur de formation et de la porosité issues de la caractérisation et regroupées dans le tableau 4.1 pour les deux échantillons, et avec la formule 4.4, on retrouve les valeurs initiales du coefficient de cimentation :

$$m_i = -\frac{\log(F_i)}{\phi_i} . \quad (4.10)$$

Le coefficient de cimentation initial est $m = 2,2$ pour l'échantillon de calcaire des Estailades, et $m = 1,8$ pour le calcaire de Saint-Maximin. Grâce aux valeurs de variation de porosité obtenues par la concentration en ions Ca^{2+} et aux valeurs du facteur de formation des courbes 4.4 et 4.6, on peut vérifier que :

$$m_2(S7) = -\frac{\log(F_2(S7))}{\phi_2(S7)} = -\frac{\log(13,7)}{\log(0,312)} \simeq 2,2 \quad , \quad (4.11)$$

et que :

$$m_2(M1) = -\frac{\log(F_2(M1))}{\phi_2(M1)} = -\frac{\log(5,8)}{\log(0,377)} \simeq 1,8 \quad . \quad (4.12)$$

Ce résultat était toutefois intuitif étant donné que la formule d'Archie 4.4 nous a donné des variations de porosité équivalentes à celles obtenues par la mesure de la concentration en ions calcium.

4.4 Vitesse des ondes sismiques

Avant et après les expériences, mais également à intervalles de temps réguliers au cours de l'expérience, nous avons mesuré la vitesse et l'amplitude des ondes P et S le long de l'échantillon. La figure 4.7 représente un exemple du signal acquis lors de la mesure des ondes S en un point donné de l'échantillon, à deux dates différentes. La courbe en trait plein représente l'onde transmise avant injection de CO_2 , et la courbe en pointillés le même signal pendant la période SC3 de percolation réactive. On remarque tout d'abord que l'amplitude crête à crête du signal est considérablement atténuée, c'est l'effet de l'augmentation de porosité due à la dissolution. En plus de la modification de l'amplitude des signaux, on peut aussi constater un décalage en temps, un ralentissement de l'onde, produit par l'évolution du milieu poreux dans lequel cette dernière se propage.

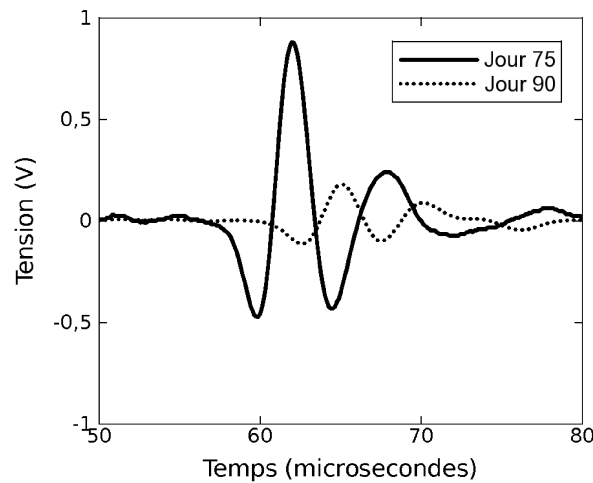


FIGURE 4.7 – Onde S transmise à travers l'échantillon de calcaire des Estailades pour une même position à deux dates différentes, avant (trait plein) et pendant (pointillés) l'injection SC3 d'eau saturée en CO_2 .

4.4.1 Calcaire des Estailades

La figure 4.8 représente l'évolution du profil de vitesse des ondes P le long de l'échantillon de calcaire des Estailades *S7* pour trois dates pendant l'injection de fluide saturé en CO_2 . On remarque tout d'abord que le profil des vitesses des ondes P à la date 75, obtenu avec la roche saturée, a une allure proche du profil de la figure 4.2, acquis sur la roche sèche, et de la courbe de densité radiologique de cet échantillon. Au jour 90, après 15 jours de percolation réactive, la vitesse a sensiblement diminué, sur les vingt premiers centimètres de l'échantillon en particulier. Au jour 110, on observe pour certaines zones de l'échantillon une diminution supplémentaire de vitesse des ondes P, tandis que d'autres sont peu affectées.

4.4.1.1 Calcul de la porosité à partir de V_P avec la formule empirique de Wyllie

La vitesse des ondes sismiques étant dépendante de la porosité du milieu, on peut convertir les profils de vitesses acquis le long de l'échantillon en profils de porosité grâce à la formule de Wyllie (Wyllie *et al.*, 1956). Cette relation empirique (cf. équation (4.13)) permet de relier les vitesses des ondes P à travers la roche saturée à celles de ces mêmes ondes à travers la matrice rocheuse seule, puis à travers le fluide seul, et à la porosité de l'échantillon. Cette loi est valable pour les roches saturées de porosité intermédiaire et non fissurale, bien cimentées (Mavko *et al.*, 1998).

$$\frac{1}{V_p} = \frac{\phi}{V_f} + \frac{1-\phi}{V_m} \quad , \quad (4.13)$$

avec ϕ la porosité de la roche, V_p la vitesse des ondes P dans la roche saturée, V_f la vitesse des ondes P dans le fluide, et V_m la vitesse des ondes P dans la calcite.

Ainsi, à partir de l'équation 4.13 et en prenant $V_f = 1496,7 \text{ m.s}^{-1}$ (Rousseau, 2003) et $V_m = 6647 \text{ m.s}^{-1}$ (Mavko *et al.*, 1998 ; Simmons et Wang, 1965), on obtient pour chaque point du profil la porosité moyenne de l'échantillon au point de mesure :

$$\phi = \frac{\frac{1}{V_p} - \frac{1}{V_m}}{\frac{1}{V_f} - \frac{1}{V_m}} \quad . \quad (4.14)$$

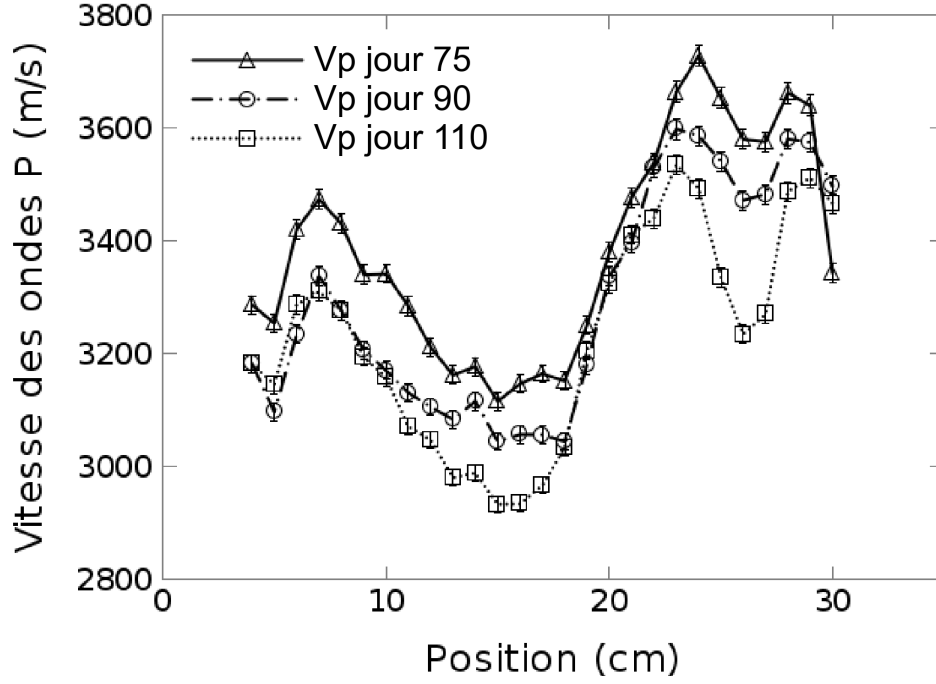


FIGURE 4.8 – *Vitesse des ondes P le long de l'échantillon de calcaire des Estailades pour différents jours : le jour 75, le jour 90, et le jour 110.*

CALCUL DE L'ERREUR SUR L'ESTIMATION DE LA POROSITÉ PAR LES VITESSES SISMQUES
D'après l'équation 4.14, on obtient en nommant A le terme constant formé à partir de V_f et V_m :

$$\phi = \frac{\frac{1}{V_p} - \frac{1}{V_m}}{\frac{1}{V_f} - \frac{1}{V_m}} = \left(\frac{1}{V_p} - \frac{1}{V_m} \right) * A \quad , \quad (4.15)$$

$$\Rightarrow \Delta\phi = \Delta\left(\frac{A}{V_p}\right) + \Delta\left(\frac{A}{V_m}\right) = \Delta\left(\frac{A}{V_p}\right) = \frac{A\Delta V_p}{V_p^2} \quad . \quad (4.16)$$

Ainsi, avec $\frac{\Delta V_p}{V_p} = \pm 0,5\%$ et $V_p = 3000 \text{ m.s}^{-1}$ (valeur minorée pour majorer l'erreur), on obtient :

$$A = \frac{V_m V_f}{V_m - V_f} \simeq 1931,6 \text{ m.s}^{-1} \Rightarrow |\Delta\phi| = \frac{A\Delta V_p}{V_p^2} = 0,0032 \quad . \quad (4.17)$$

L'erreur absolue sur la porosité, $\Delta\phi$, est donc inférieure à $\pm 0,0035$ et la précision $\frac{\Delta\phi}{\phi}$ est inférieure à $\pm 1,5\%$ pour l'échantillon S7 (ϕ minorée à 0,25).

Les courbes de porosité obtenues en utilisant l'équation 4.14 sont représentées dans la figure 4.9. Les lignes horizontales représentent la valeur moyenne de la porosité obtenue aux trois dates de mesure. On peut ainsi quantifier le changement de porosité de l'échantillon pendant l'expérience. La modification de porosité moyenne entre le jour 75 et le jour 110 peut être estimée à $+2,8\%$ environ grâce à la mesure de la vitesse des ondes sismiques à travers l'échantillon.

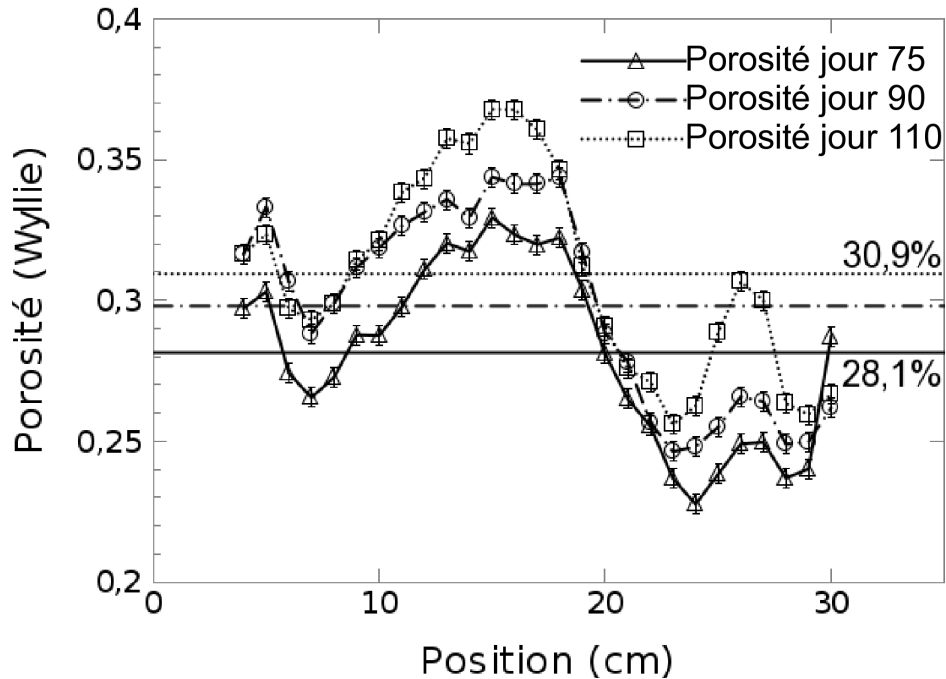


FIGURE 4.9 – Porosité le long de l'échantillon de calcaire des Estailades à différents jours : le jour 75, le jour 90, et le jour 110.

Si l'on observe sur la figure 4.9 les variations de porosité en fonction de la position le long de l'échantillon, on note tout d'abord que le profil initial (jour 75) de l'échantillon présente des variations importantes. Ensuite, en observant les deux autres courbes, on remarque que certaines zones ont connu une importante augmentation de porosité au jour 90, notamment les positions comprises entre 4 cm et 19 cm, puis 23 cm à 29 cm. Les vingt jours suivant de percolation ont permis d'accentuer cette augmentation de porosité dans certaines zones de l'échantillon (typiquement entre les positions 11 et 18, puis 22 et 29 de la courbe du jour 110).

Pour visualiser ceci plus facilement, nous avons tracé en figure 4.10, sur le même graphe, les évolutions de porosité par rapport au jour référence 75. Ainsi on peut observer la variation de porosité au jour 90, après huit jours de percolation d'eau saturée en CO_2 (la première injection de fluide acide de la période SC3 datant du jour 82). De même, cette figure représente l'évolution de la porosité après 28 jours d'injection, au jour 110. Ces courbes étant produites par différences entre les courbes de la figure 4.9, l'incertitude absolue sur ces points est le double de celle des points calculés par la formule 4.17, soit inférieure à $\pm 0,007$.

En étudiant la courbe en trait plein de la figure 4.10, qui montre l'évolution de la porosité pendant les huit premiers jours d'injection, on constate tout d'abord que l'augmentation de la porosité a été importante (jusqu'à 3%) sur les dix premiers centimètres de l'échantillon, là où le fluide de pH 4 entre en contact avec le carbonate, avant tout état stationnaire. Au-delà de la position 12 l'ensemble des valeurs de variation de porosité est comprise dans les barres d'erreur, à l'exception du dernier point.

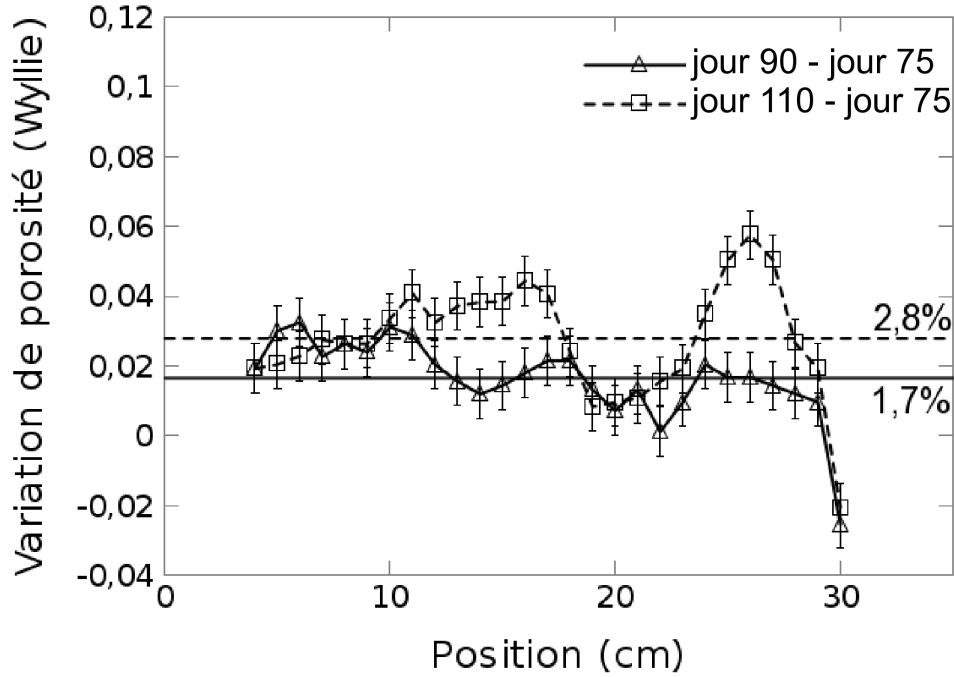


FIGURE 4.10 – Modification apportée à la porosité du calcaire des Estailades au cours de l’injection d’eau saturée en CO_2 , en tout point de l’échantillon. Après quinze jours d’expérience (trait noir), et après un mois (trait pointillé). Entre le jour 90 et le jour 75 (en trait noir), et entre le jour 110 et le jour 75 (en pointillés).

La courbe en pointillés, témoignant de l’évolution de la porosité après 28 jours d’injection de fluide saturé en CO_2 , montre une allure relativement proche, mais avec des augmentations conséquentes de la porosité dans certaines zones jusqu’alors non affectées par la circulation du fluide. C’est le cas notamment entre les positions 11 et 18 ainsi que 22 à 29. Cela laisse penser à une éventuelle ouverture de nouveaux chemins de circulation préférentielle dans le réseau poreux.

Enfin, en sortie de l’échantillon (position 30), on peut remarquer l’existence de deux points aux valeurs négatives, c’est-à-dire témoignant d’une baisse de porosité pour les deux courbes au trentième centimètre. Ces deux valeurs pourraient illustrer une redéposition ou précipitation en sortie d’échantillon, ou un problème de mesure en ce point sur la courbe initiale. C’est cette dernière hypothèse qui est la plus probable, avec une probable mesure aberrante lors de l’acquisition de ce point de la courbe du jour 75, courbe soustraite aux courbes des jours 90 et 110 pour obtenir cette figure.

En moyenne, on peut donc observer une augmentation de la porosité de l’échantillon de $(2,8 \pm 0,7)\%$, compatible avec les variations de porosité obtenues par les deux autres méthodes. En effet, dans la partie 4.2 on a vu que la porosité de l’échantillon a été augmentée de 2,6% environ d’après la mesure de la concentration du calcium dissous, et cette augmentation a été estimée à 2,7% par le suivi du facteur de formation électrique sur la même période.

4.4.2 Calcaire de Saint-Maximin

On a effectué les mêmes mesures des vitesses des ondes sismiques le long de l'échantillon de St-Maximin. Celui-ci étant plus court et les mesures n'étant faites que tous les centimètres, chaque courbe comprend moins de points (figure 4.11).

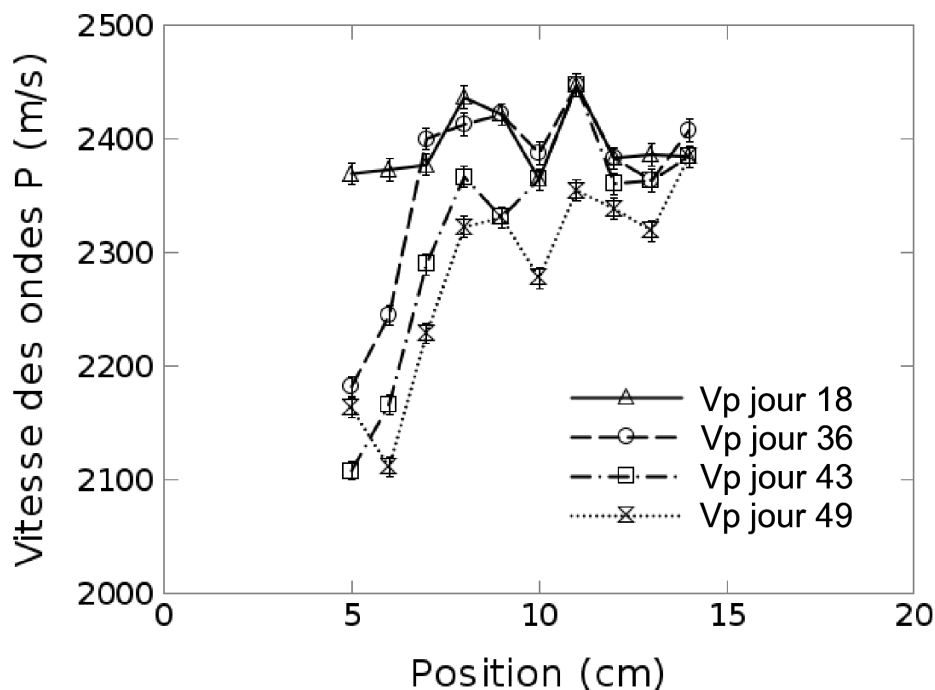


FIGURE 4.11 – *Vitesse des ondes P le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.*

On remarque tout d'abord l'homogénéité générale du profil de vitesses initial, en traits pleins. Ses variations sont comprises dans une fourchette d'une centaine de mètres par seconde, alors que le profil initial de V_p pour l'échantillon des Estailades avait une plage de variations bien supérieure, de l'ordre de 600 m.s^{-1} (figure 4.8). Ceci illustre l'homogénéité de la porosité de *M1* à l'échelle de l'échantillon. Comme pour l'échantillon de calcaire des Estailades *S7*, les courbes de densité radiologiques et de profils de vitesses le long de l'échantillon à l'état sec représentées sur la figure 4.2 sont en très bon accord, nous montrant cette homogénéité à l'échelle de l'échantillon, et confirmant la validité des mesures de vitesses pour l'observation de la porosité.

En s'intéressant aux courbes en pointillés, prises au cours de l'injection, on observe la diminution importante de la vitesse des ondes P dans les premiers centimètres de l'échantillon. La dissolution semble plus homogène que lors de l'injection dans *S7*, avec des profils se décalant progressivement illustrant l'avancée d'un front de dissolution. La courbe en pointillés fins (jour 49) montre néanmoins une baisse marquée de la vitesse aux positions 10 et 13 rappelant les motifs interprétés comme des ouvertures de chemins de circulation préférentielle pour l'échantillon *S7*.

L'échantillon ayant été percé en fin d'expérience par un chemin de circulation préférentielle, la progression du front principal est moins avancée lors de la réalisation du dernier profil que pour l'échantillon de calcaire des Estailades, ce front pouvant être situé aux alentours de la position 8.

4.4.2.1 Calcul de la porosité à partir de V_P avec la formule empirique de Wyllie

Les courbes de porosité obtenues grâce à la formule de Wyllie pour les quatre dates étudiées, avant, pendant et après la percolation réactive sont représentées sur la figure 4.12.

On notera que la formule empirique de Wyllie est normalement applicable pour des échantillons de faible porosité et bien cimentés (Mavko *et al.*, 1998), ce qui n'est pas le cas de cet échantillon de calcaire de Saint-Maximin. Ceci explique les valeurs de porosité absolues trop élevées que l'on obtient par cette formule. On a choisi de conserver quoi qu'il en soit le même protocole que pour l'échantillon des Estailades, avec l'utilisation de cette formule, en gardant un oeil critique sur les résultats quantitatifs qui en découlent.

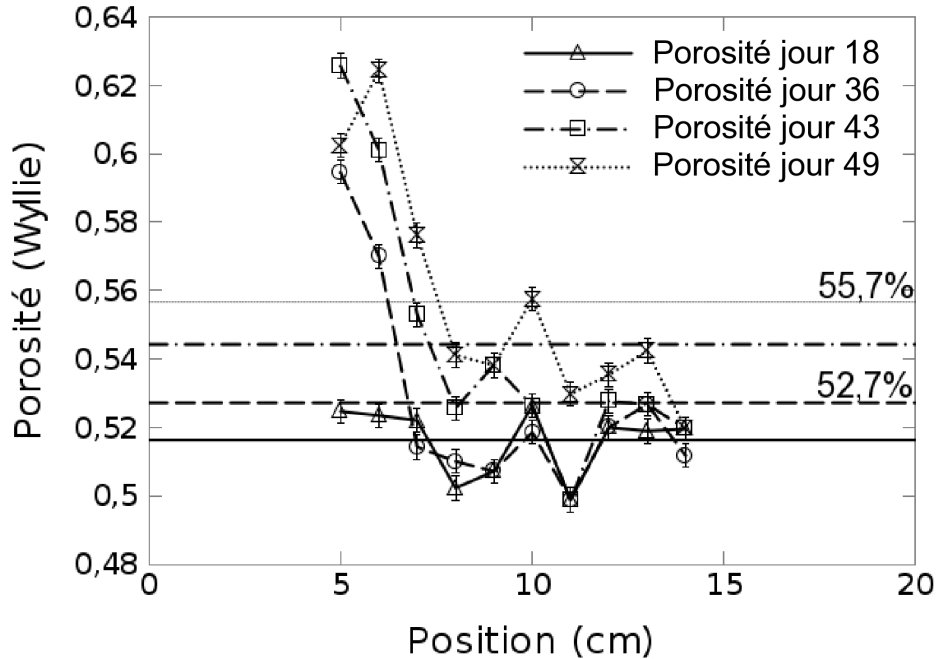


FIGURE 4.12 – Porosité calculée par la formule de Wyllie le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.

Les incertitudes sur ces mesures sont calculées par la même équation 3.8, modifiée pour un temps de vol t de 45 ms environ, plus long, dû à la porosité supérieure de l'échantillon. On obtient ainsi une précision de l'ordre de $\pm 0,35\%$ pour V_p en majorant l'erreur relative de $\pm 0,33\%$ ainsi obtenue.

La figure 4.13 représente, pour cet échantillon, l'évolution du profil de porosité calculé par la formule de Wyllie (équation 4.13), assorti des erreurs sur la porosité. Ces erreurs absolues sont calculées grâce à la formule de l'équation 4.16, adaptée à une vitesse $V_p = 2200 \text{ m.s}^{-1}$, et avec $\left| \frac{\Delta V_p}{V_p} \right| = 0,35\%$.

On obtient ainsi une erreur absolue sur la porosité calculée inférieure à 0,0035 pour M1.

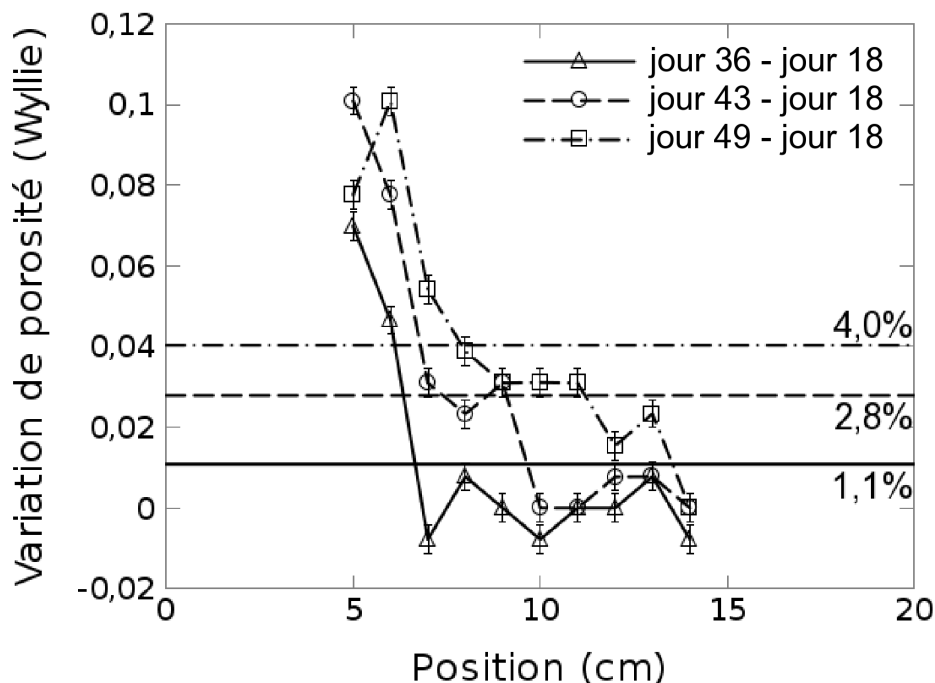


FIGURE 4.13 – Modification apportée à la porosité (Wyllie) du calcaire de St-Maximin au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2 , en tout point de l'échantillon. Entre le jour 36 et le jour 18 (en noir), entre le jour 43 et le jour 18 (en pointillés réguliers), et entre le jour 49 et le jour 18 (en pointillés irréguliers).

D'un point de vue quantitatif, les valeurs moyennes de l'évolution de la porosité au cours de l'expérience, représentées figure 4.13, montrent une augmentation de porosité d'environ $(2,9 \pm 0,7)\%$ entre le jour 36 et le jour 49, ce qui n'est pas compatible avec la valeur de 1,6% obtenue par la composition chimique du fluide sortant (cf. partie 4.2) et retrouvée indépendamment grâce au facteur de formation électrique et la loi d'Archie (1,7%, cf. partie 4.3) sur la même période. Ici encore, les courbes de la figure 4.13 étant produites par différences entre les courbes de la figure 4.12, l'incertitude absolue sur ces points est le double de celle des points calculés par la formule de Wyllie 4.13, soit inférieure à $\pm 0,007$.

Cependant, ce calcul d'incertitudes est biaisé par le fait que les conditions requises pour l'utilisation de la formule de Wyllie ne sont pas réunies dans le cas de l'échantillon M1.

4.4.2.2 Calcul de la porosité à partir de V_P avec la formule empirique de Raymer-Hunt-Garner.

La formule de Wyllie a été généralisée par Raymer et ses collaborateurs en 1980 pour toutes les valeurs de porosité (Mavko *et al.*, 1998 ; Raymer *et al.*, 1980).

Il s'agit en fait de trois formules décrivant de manière empirique la relation entre la vitesse des ondes P dans une roche et sa porosité pour trois domaines de porosité. Pour le domaine nous concernant ici, avec $\phi = 36\%$, cette formule est :

$$V = (1 - \phi)^2 V_0 + \phi V_{fl} \quad , \quad (4.18)$$

avec V la vitesse des ondes P à travers la roche, $V_0 = 6647 \text{ m.s}^{-1}$ la vitesse de propagation des ondes P dans la calcite, et $V_{fl} = 1496,7 \text{ m.s}^{-1}$ la vitesse de propagation des ondes P dans le fluide.

La détermination de ϕ revient donc à résoudre l'équation polynomiale suivante :

$$\phi^2 + \left(\frac{V_{fl}}{V_0} - 2 \right) \phi + \left(1 - \frac{V}{V_0} \right) = 0 \quad . \quad (4.19)$$

La solution physique unique à cette équation (satisfaisant $\phi < 1$) est ainsi numériquement :

$$\phi = \frac{1,7748}{2} - \frac{\sqrt{6,018.10^{-4} \times V - 8,500.10^{-1}}}{2} \quad . \quad (4.20)$$

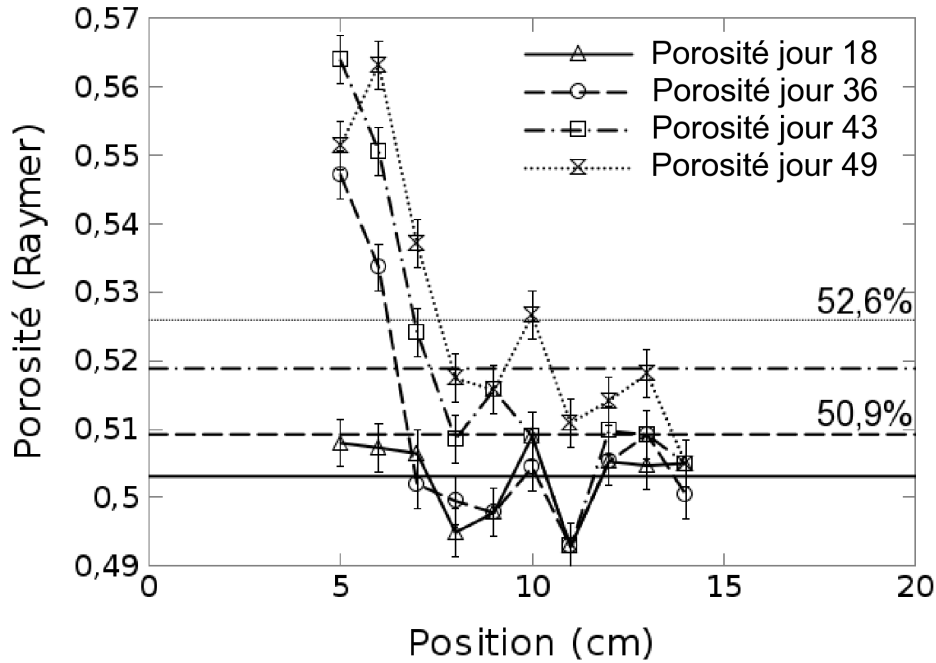


FIGURE 4.14 – Porosité calculée par la formule de Raymer le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.

En appliquant cette formule numérique aux profils de vitesses représentés figure 4.11, on obtient les profils de porosité de la figure 4.14. On peut remarquer que ces courbes présentent les mêmes variations que les profils obtenues par la formule de Wyllie (cf. figure 4.12), mais diffèrent par les valeurs absolues et amplitudes. La formule de Wyllie donnait des porosités moyennes comprises entre 0,517 et 0,557 entre les jours 18 et 49, tandis que la formule de Raymer donne pour ces mêmes dates des porosités de 0,503 et 0,526. Si ces dernières valeurs sont toujours trop importantes au vu de la porosité initiale de l'échantillon lors de sa caractérisation ($\phi_i(M1) = 0,366$), elles sont inférieures à celles obtenues par la formule de Wyllie, et leur plage de variation se trouve diminuée de moitié. À partir de ces profils, on a tracé (figure 4.15) les différences entre les courbes des jours 36, 43 et 49 et la courbe initiale du jour 18, afin d'imager l'évolution de la porosité au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2 , selon la formule de Raymer-Hunt-Garner.

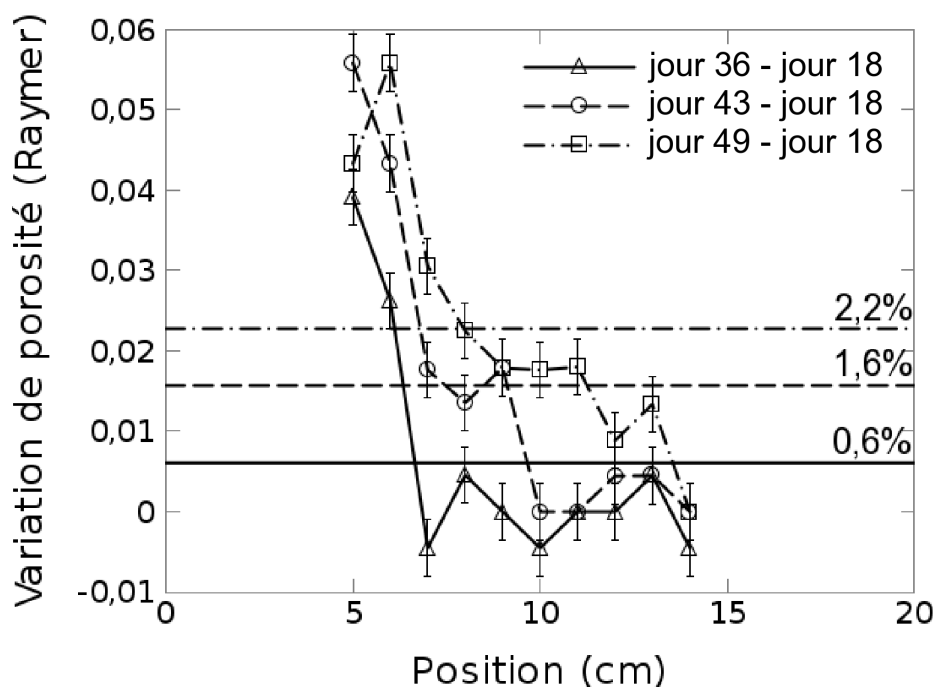


FIGURE 4.15 – Modification apportée à la porosité (Raymer) du calcaire de St-Maximin au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2 , en tout point de l'échantillon. Entre le jour 36 et le jour 18 (en noir), entre le jour 43 et le jour 18 (en pointillés réguliers), et entre le jour 49 et le jour 18 (en pointillés irréguliers).

Entre les jours 36 et 49, dates prises comme repères pour les mesures d'évolution de la porosité par les méthodes chimique et électrique, on observe une variation de porosité calculée par la formule de Raymer de 1,67%. Cette valeur est très satisfaisante, puisque parfaitement cohérente avec les deux autres mesures indépendantes de variation de porosité de l'échantillon M1 de calcaire de Saint-Maximin. Cependant il faut tout de même rappeler que les courbes de porosité de la figure 4.14 obtenues par cette méthode ont une valeur absolue particulièrement élevée (autour de 50%) en comparaison de la valeur de porosité initiale obtenue lors de la caractérisation (36%).

Le tableau 4.5 compile les résultats pour cet échantillon.

Échantillon	$\delta\phi_{chim}$	$\delta\phi_{elec}$	$\delta\phi_{sism}$
Saint-Maximin	$+(1,6 \pm 0,3)\%$	$+(1,7 \pm 0,7)\%$	$+(1,7 \pm 0,7)\%$

TABLE 4.5 – *Évolution de la porosité du calcaire de Saint-Maximin soumis à une injection d'eau riche en CO_2 calculée par trois méthodes indépendantes : électrique, sismique, et chimique.*

Pour l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin soumis à une injection d'eau salée saturée en CO_2 , la variations de porosité est obtenue par trois méthodes indépendantes, donnant des résultats en excellente adéquation. En effet, que ce soit grâce à la mesure de la quantité de calcite dissoute dans le fluide sortant, avec le facteur de formation électrique converti en porosité grâce à la loi d'Archie, ou en calculant la différence des porosités obtenues par mesure de la vitesse des ondes P grâce à la formule de Raymer, la porosité de M1 a augmenté de 1,7% entre le jour 36 et le jour 49.

4.5 Amplitude des ondes sismiques

Après avoir mesuré les effets de la dissolution de la calcite sur la vitesse des ondes sismiques, nous nous sommes intéressés à son effet sur leur amplitude. Généralement, l'amplitude des ondes de compression et de cisaillement varie davantage que leur vitesse lors de la modification physique d'un matériau. Cette amplitude peut être définie par (Toksöz *et al.*, 1979) :

$$A(f) = G(x)e^{-\alpha(f)x}e^{i(2\pi ft - kx)} \quad , \quad (4.21)$$

avec A l'amplitude d'une onde sismique plane, f la fréquence, x la distance, $k = 2\pi f/v$ le nombre d'onde, v la vitesse, $G(x)$ un facteur géométrique incluant la diffusion, les réflexions, etc, et $\alpha(f)$ le coefficient d'atténuation dépendant de la fréquence.

Les mesures étant effectuées avec des transducteurs de 1 *Mhz*, il est raisonnable de considérer que le coefficient d'atténuation α a une dépendance linéaire en fréquence (Toksöz *et al.*, 1979 ; Gong, 2005). Ainsi, en prenant pour référence A_0 une mesure d'amplitude crête à crête effectuée avant injection de fluide riche en CO_2 sur l'échantillon saturé, et en effectuant une mesure A_1 de l'amplitude au cours de l'expérience à la même position, le logarithme des rapports d'amplitude est proportionnel à l'évolution de l'atténuation des ondes sismiques en cette position de l'échantillon à une fréquence donnée.

4.5.1 Calcaire des Estailades

La figure 4.16 présente les profils d'amplitude du signal des ondes S à trois dates données normalisées à la valeur de l'amplitude au jour 75. Il s'agit d'un rapport d'amplitudes, et plus

précisément du rapport entre l'amplitude crête à crête de l'onde S à la date du graphe (A) et à la position considérée et cette même amplitude crête à crête au début de l'expérience (A_0). Ainsi, une valeur de 1 de ce rapport d'amplitudes montrera que l'amplitude moyenne à cette position est équivalente à la valeur initiale, tandis qu'une valeur de 0,1 témoigne d'une diminution d'amplitude d'un facteur 10. Si aucune relation simple ne relie l'amplitude des ondes S à la porosité ou à l'hétérogénéité de la roche, cette grandeur, par le biais de son rapport à une mesure de référence, est néanmoins utilisée dans cette étude de manière relative comme observable qualitative.

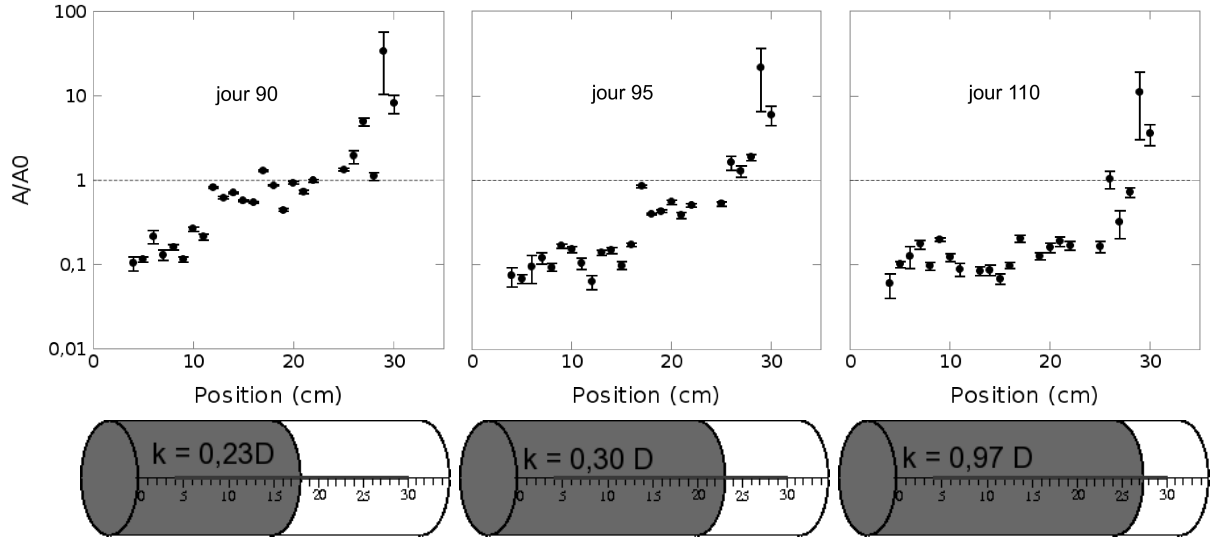


FIGURE 4.16 – *Rapports d'amplitude des ondes S pour trois dates au cours d'un mois de réaction. Chacun des trois graphes représente le rapport entre l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise à la date donnée et l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise avant expérience en tout point de l'échantillon des Estailades.*

CALCUL DE L'ERREUR SUR LES RAPPORTS D'AMPLITUDE

Les erreurs relatives pour ces mesures d'amplitudes sont calculées pour chaque point séparément. Chaque amplitude est une différence de tension crête à crête lue sur l'oscilloscope numérique, A , exprimée en Volts (V). La précision de la lecture entraîne une erreur de ± 10 mV sur la différence, soit une erreur absolue « globale » de ± 20 mV en prenant la même valeur pour l'incertitude liée à la dispersion statistique liée au couplage mécanique, et évoquée partie 3.1.3.2. Ainsi, l'erreur relative sur le rapport d'amplitudes pour chaque mesure du profil de $S7$ durant l'injection de CO_2 est de :

$$\left| \frac{\Delta \left(\frac{A}{A_0} \right)}{\frac{A}{A_0}} \right| = \left| \frac{\Delta A}{A} \right| + \left| \frac{\Delta A_0}{A_0} \right| = \left| \frac{0,02}{A} \right| + \left| \frac{0,02}{A_0} \right| . \quad (4.22)$$

L'équation 4.22 décrit comment sont calculées les barres d'erreur des profils de la figure 4.16.

Le graphe du jour 90 de la figure 4.16 montre une diminution d'amplitude très localisée en début d'échantillon, d'un ordre de grandeur, et une augmentation de l'amplitude de plus d'un ordre de grandeur, dans la deuxième partie de l'échantillon. Au jour 95, on remarque que d'avantage de valeurs ont un rapport d'amplitude inférieur à 1, notamment entre les position 10 cm et 25 cm. Les valeurs proches des extrémités de l'échantillon sont, elles, inchangées. Puis, au jour 110, on observe un palier bas de rapport d'amplitude ($A/A_0 \simeq 0,1$) entre l'entrée de l'échantillon et la position 25. Ces trois graphiques font penser à l'avancée d'un front dans l'échantillon au

cours du temps, les valeurs de l'amplitude des ondes S dans les derniers centimètres à l'extrémité de sortie de l'échantillon S7 demeurent supérieures à 1. Ceci montre que l'amplitude des ondes S au jour 110 est supérieure à l'amplitude initiale (au jour 75) de ces mêmes ondes transmises à travers l'échantillon dans cette zone.

4.5.2 Calcaire de Saint-Maximin

On effectue le même travail sur les amplitudes des ondes S mesurées sur l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin. Les trois courbes représentées sur la figure 4.17 sont, pour chaque position le long de l'échantillon M1, le rapport de l'amplitude des ondes S au jour donné et de l'amplitude des ondes S au jour 18. Ces profils de rapports d'amplitude ont une allure proches de ceux de la figure 4.16 pour l'échantillon S7. Les différences principales résident dans le plus petit nombre de points en raison de la longueur inférieure de l'échantillon, dans la dispersion moindre des points de mesure, et surtout dans l'absence de valeurs de rapports inférieurs à 1 en approchant de la face de sortie de l'échantillon.

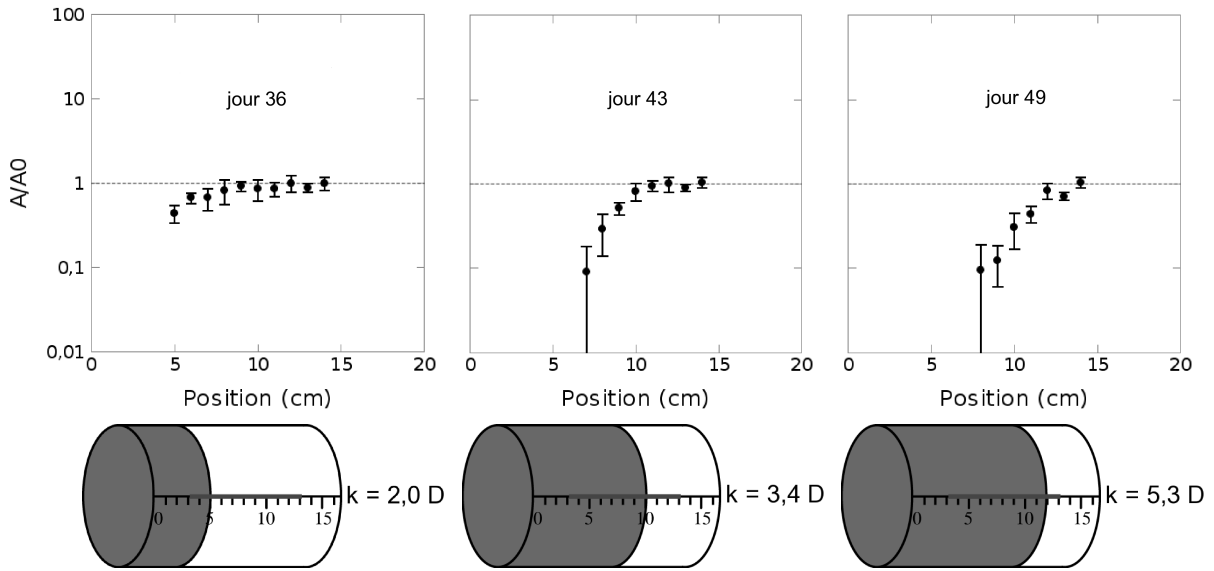


FIGURE 4.17 – *Rapports d'amplitude des ondes S pour trois dates lors de l'injection SC3. Chacun des trois graphes représente le rapport entre l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise à la date donnée et l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise avant expérience (jour 18) en tout point de l'échantillon de Saint-Maximin.*

La courbe du jour 36 de la figure 4.17 montre un profil de rapports d'amplitudes assez plat, avec les rapports d'amplitudes des premiers centimètres de l'échantillon légèrement inférieurs à 1, ce jusqu'à la position 9. La position 5, près de l'entrée de l'échantillon est le point marquant la diminution d'amplitude la plus importantes, avec $A/A_0 \simeq 0,5$. Au jour 43, la diminution d'amplitude en début d'échantillon est très fortement marquée, avec des valeurs non mesurables aux positions 5 et 6, et une diminution d'un ordre de grandeur au point 7, puis des rapports rejoignant la valeur 1 caractéristique de l'amplitude initiale autour de la position 11. En fin

d'expérience, juste avant le perçage de l'échantillon observé sur la perméabilité, le facteur de formation et la chimie (cf. paragraphes 4.2), le profil est un peu plus creusé, avec des valeurs non mesurables jusqu'au point 7, et seulement les trois dernières positions à une valeur d'amplitude proche de l'amplitude initiale au jour 18.

4.5.3 Discussion

L'étude de l'amplitude des ondes de cisaillement du paragraphe 4.5 a mis en évidence une augmentation de l'amplitude des ondes S sur les positions proches de la sortie de l'échantillon de calcaire des Estailades S7 lors de l'injection de fluide saturé en CO_2 . Une augmentation de l'amplitude d'une onde sismique en comparaison à l'état initial témoigne d'un milieu moins dissipatif, plus homogène, avec une proportion de fluide moins importante, et donc que l'on peut interpréter comme une baisse de porosité.

Ainsi, au cours du temps, on voit l'avancée d'un front, avec, au jour 110, un long palier d'amplitude basse montrant l'étendue de la zone où la dissolution a été importante, et autour de la position 27 une remontée forte, avec un passage dans les valeurs supérieures à 1 mettant probablement en évidence une précipitation sur les derniers centimètres de l'échantillon.

Une forte atténuation correspond ici à un faible rapport d'amplitudes. Les valeurs faibles de ce rapport ($A/A_0 \simeq 0,1$) observées en entrée de l'échantillon S7 peuvent être interprétées comme une augmentation de l'hétérogénéité de l'échantillon (Lucet et Zinszner, 1992). Ces auteurs, ayant comparé l'atténuation de leurs échantillons à des coupes scanner correspondantes constatent que d'importantes atténuations ultrasoniques correspondent à de fortes hétérogénéités dans le milieu poreux, d'une dimension équivalente à la longueur d'onde utilisée. Ici, nous utilisons des transducteurs à 1 MHz. Avec une vitesse moyenne des ondes S dans l'échantillon de calcaire des Estailades de 2000 m.s^{-1} environ, les hétérogénéités en question devraient être de dimension supérieure à 2 mm. Le seul phénomène pouvant causer de telles hétérogénéités tout en étant en accord avec les résultats obtenus par la mesure des vitesses des ondes de compression et l'augmentation de la porosité est la dissolution de la calcite, avec la création de chemins de circulation préférentielle de plusieurs millimètres de diamètre.

Ce front ayant été interprété comme un front de dissolution et semblant s'approcher fortement de l'extrémité de l'échantillon S7, nous avons arrêté les injections à ce stade, et démonté l'échantillon afin de le sécher et de commencer le volet de caractérisation après expérience du paragraphe 4.6.

Les profils de rapports d'amplitude de l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin M1 de la figure 4.17 évoque également l'avancée d'un front, mais avec une moindre dispersion des valeurs, observation à mettre en relation avec l'homogénéité de l'échantillon, moins exposé que S7 au phénomène de *path dispersion* (Rasolofosaon et Zinszner, 2003). La différence principale entre ces courbes et celles de l'échantillon des Estailades (figure 4.16) est l'absence d'une éventuelle redéposition en fin d'échantillon.

Cette différence peut s'interpréter relativement aisément en terme de précipitation. En effet, l'injection SC3 pour l'échantillon M1 a été réalisée à un débit contrôlé de 10 ml.min^{-1} , débit deux fois plus important que lors des injections dans l'échantillon S7, afin de conserver une bonne résolution sur la mesure de pression malgré la perméabilité plus importante de l'échantillon (initialement $K_{eau} = 1,69 D$). De plus, cet échantillon est également plus court, donc le temps de résidence du fluide dans l'échantillon est bien moindre, ne permettant pas le développement de conditions chimiques favorables à la précipitation dans l'échantillon.

Pour cet échantillon M1, le perçage de l'échantillon, observé sur les observables physico-chimiques paragraphe 4.2, a causé l'arrêt de l'injection et sa caractérisation après expérience.

4.6 Caractérisation des échantillons après expérience

4.6.1 Caractérisation de l'hétérogénéité créée dans l'échantillon de calcaire des Estailades par déplacement miscible

Avant de désaturer et démonter l'échantillon pour la caractérisation post expérience, nous avons procédé à un déplacement miscible, comme décrit partie 3.1.2.4 afin de caractériser l'hétérogénéité provoquée par la dissolution de calcite au sein de la roche.

La courbe de la figure 4.18 représente l'évolution de la conductivité électrique de la roche initialement saturée d'eau distillée en fonction du volume injecté d'eau fortement salée (25 g.l^{-1}), avant et après expérience. Ces deux grandeurs sont normalisées respectivement à la conductivité maximale atteinte en fin d'expérience, et au volume poreux de l'échantillon.

Avant injection de CO_2 (figurés vides), le seuil de percolation était atteint après injection de $0,42 V_{por}$, et le volume de stabilité était de $2,4 V_{por}$. Après expérience, en figurés noirs, le seuil de percolation est atteint beaucoup plus rapidement, après injection de $0,03 V_{por}$, et le volume de stabilité n'est toujours pas véritablement atteint après injection de $16 V_{por}$ de saumure.

Ceci est caractéristique d'un milieu très fortement hétérogène, présentant d'importants chemins de circulation préférentielle qui charrient la quasi totalité du fluide très rapidement vers l'extrémité de l'échantillon. Le reste du milieu poreux, moins atteint par la dissolution, conserve l'eau distillée en ses pores, ce qui empêche la stabilisation à la valeur maximale de conductivité, caractéristique de la roche saturée de saumure. L'échantillon S7 présente une hétérogénéité extrêmement importante, avec un volume de stabilité supérieur à $16 V_{por}$. Il est évident que des chemins de circulation préférentielle conduisent la grande majorité du fluide injecté vers la sortie de l'échantillon.

Nous ne pouvons présenter de déplacement miscible post-expérience pour l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin M1, car le perçage de l'échantillon, évocateur en lui-même quant à la

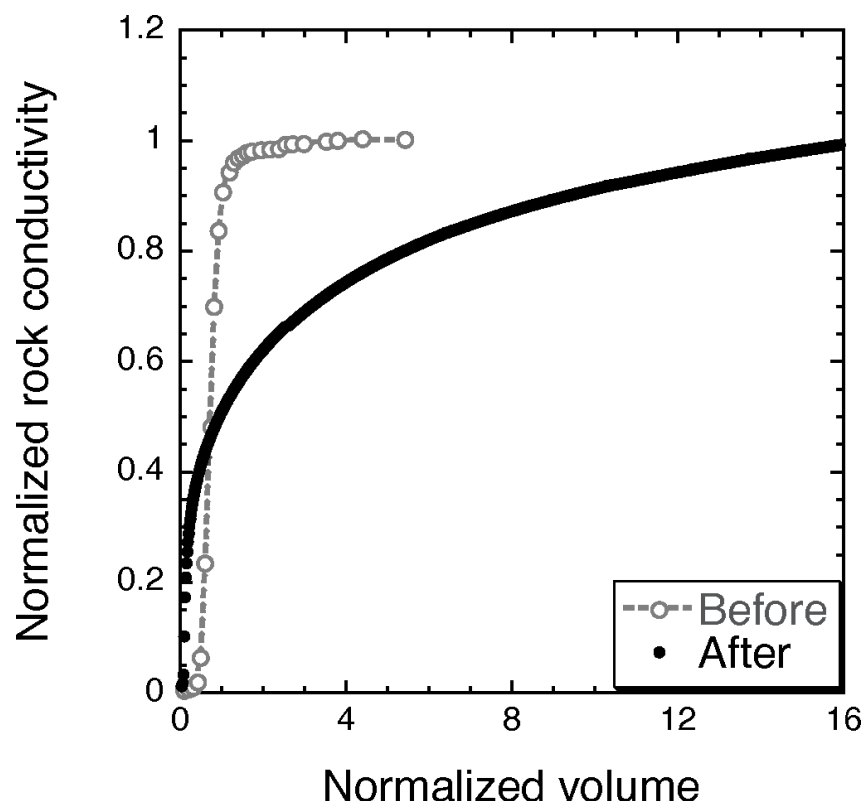


FIGURE 4.18 – Évolution de la conductivité électrique de l'échantillon de calcaire S7 initialement saturé d'eau distillée, avant (en blanc) et après (en noir) expérience, lors de l'injection de 16 volumes poreux d'eau fortement salée (25 g.l^{-1}). Cette conductivité de la roche est normalisée à la valeur maximale atteinte en fin d'expérience.

création de wormholes, empêche la réalisation d'un déplacement miscible. Le seuil de percolation est en effet quasi immédiat lors d'une injection d'eau salée, tandis que le volume de stabilité ne serait jamais atteint, le chemin de circulation préférentielle principal drainant la totalité du fluide hors de l'échantillon, court-circuitant totalement le milieu poreux.

4.6.2 Caractérisation post-expérience par tomodesitométrie

4.6.2.1 Calcaire des Estailades

a) Observation

Lorsque nous avons décollé les deux électrodes en inox, permettant de mesurer la résistivité de l'échantillon des Estailades pendant injection, nous avons vu apparaître les deux faces de la roche, celle d'entrée du fluide (figure 4.19), et celle de sortie (figure 4.20).

La face de sortie a un aspect très proche de l'aspect initial de la roche. Si il y a une modification, due à une éventuelle précipitation en sortie d'échantillon, celle-ci n'est pas visible à l'oeil

nu.

La face d'entrée, en revanche, a été transformée, avec la création de nombreuses cavités en surface. La plus importante de ces figures de dissolution mesure 7mm de diamètre. On ne peut savoir par simple observation visuelle si ces cavités sont l'entrée de chemins de circulation préférentielle atteignant une distance importante au sein de l'échantillon.

Pour avoir accès à cette information de manière non destructive, nous avons effectué à nouveau une tomodesitométrie de l'échantillon au scanner à rayons X.

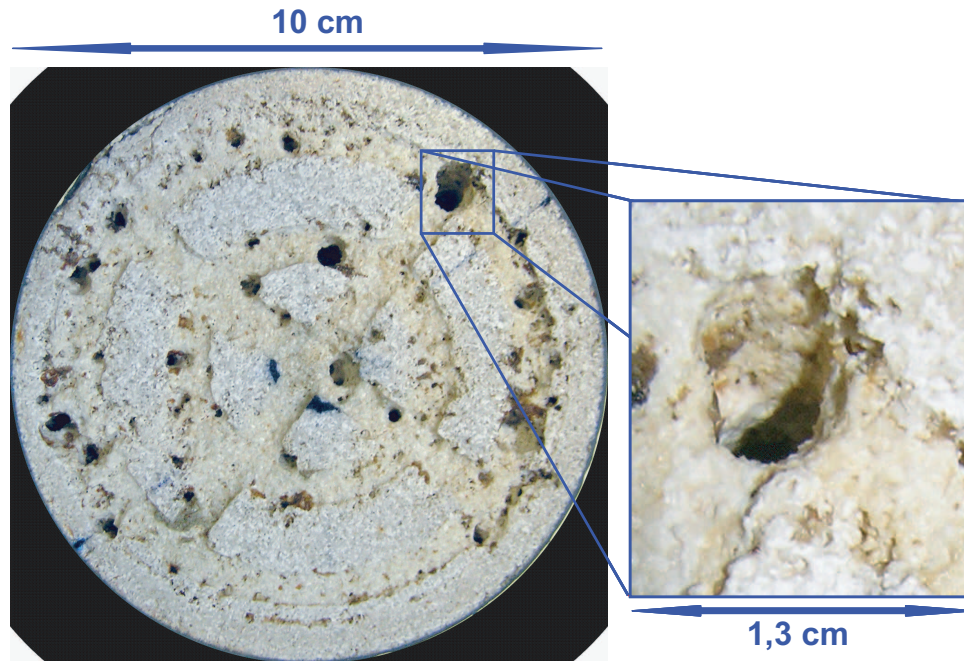


FIGURE 4.19 – Face d'entrée de l'échantillon de calcaire des Estailades après un mois d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 5ml.min^{-1} . À droite, agrandissement sur une cavité créée.

b) Densité radiologique et porosité

Cette technique, présentée partie 3.1.1, nous donne accès au profil longitudinal de densité radiologique moyenne de la roche, mais également à des coupes millimétriques qui, assemblées, permettent d'obtenir une représentation 3D de la porosité créée dans l'échantillon. Nous obtenons ainsi par reconstitution numérique la vue de la figure 4.21, avec cette impressionnante arborescence de ramifications. Pour rappel, la résolution spatiale du scanner médical utilisé est de 1 mm en longueur qui est la distance choisie entre deux coupes, et de $90\text{ }\mu\text{m}$ pour chaque pixel d'une coupe (Le Guen *et al.*, 2007).

On observe la création de nombreux chemins de circulation préférentielle en entrée de l'échantillon, ce qui correspond à la zone où l'augmentation de porosité est la plus importante, comme on a pu le voir avec l'étude des vitesses et amplitudes des ondes sismiques. La plupart de ces chemins, d'une dimension pluri-millimétrique, ont ensuite été abandonnés au profit d'une voie principale. On peut également remarquer des étranglements dans cet arrangement, qui semblent liés à l'hétérogénéité initiale de l'échantillon. Comme nous le disions, cette technique donne éga-



FIGURE 4.20 – Face de sortie de l'échantillon de calcaire des Estailades après un mois d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 5ml.min^{-1} .

lement accès au profil de densité radiologique de l'échantillon. Cette valeur permet d'obtenir la porosité pour chaque position le long de l'échantillon. La figure 4.22 représente ce profil de densité

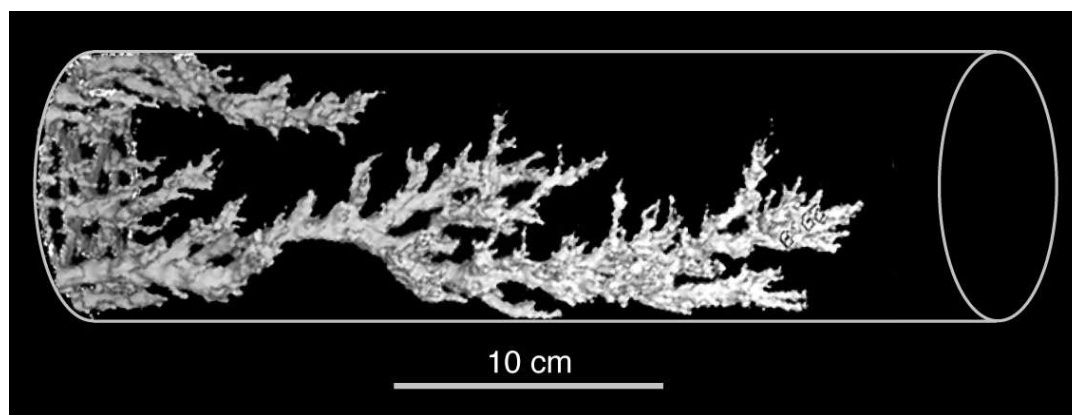


FIGURE 4.21 – Représentation de l'espace poreux créé dans l'échantillon des Estailades obtenue par tomodesitométrie.

radiologique avant et après injection de CO_2 . On peut donc vérifier ici, grâce à cette grandeur liée à la porosité, les hypothèses faites lors de l'étude des ondes sismique. Ainsi, on observe tout d'abord que la densité subit une diminution globale importante, liée à une augmentation de porosité. Pour mieux comparer ces deux courbes, nous avons tracé (figure 4.23) la différence entre

le profil après expérience de percolation réactive et le profil initial.

On constate donc d'après cette courbe une importante hausse de porosité en entrée de l'échantillon, soit une diminution de densité radiologique de 150 UH , puis un palier avec quelques variations autour de -30 UH entre les positions 10 cm et 30 cm , et enfin, en sortie d'échantillon, une augmentation de densité radiologique par rapport à l'état initial, soit une baisse de la porosité.

Le scanner X nous montre ainsi une baisse de la porosité en sortie d'échantillon, que nous interprétons comme une précipitation. Ceci sera discuté paragraphe 4.6.3

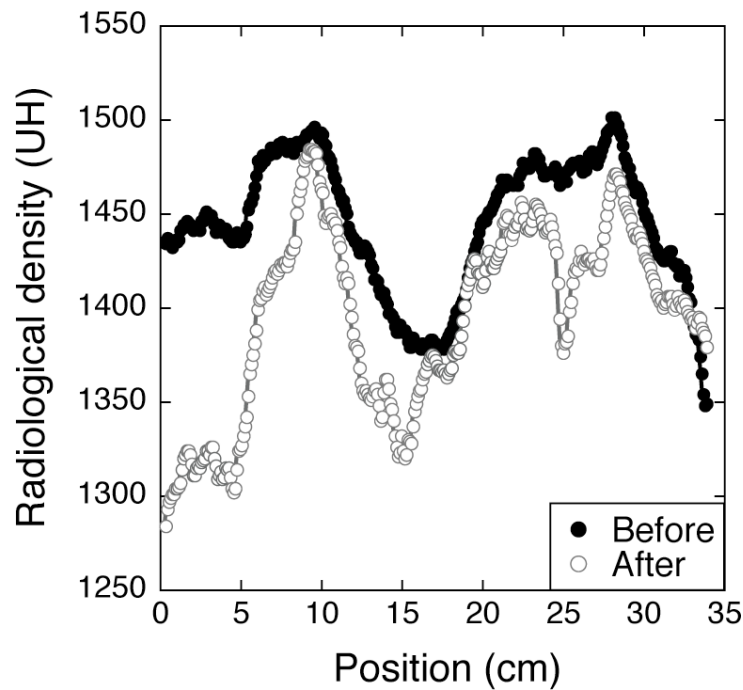


FIGURE 4.22 – Profil de densité radiologique moyenne de l'échantillon S7 par section le long de l'échantillon avant et après injection de CO_2 .

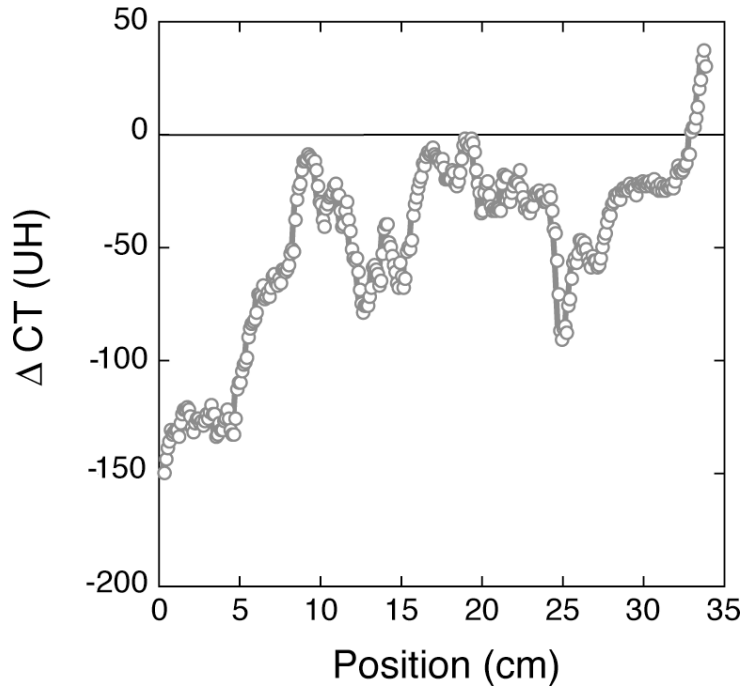


FIGURE 4.23 – *Différence entre les profils de densité radiologique après injection de CO_2 et avant.*

4.6.2.2 Calcaire de Saint-Maximin

a) Observation

Pour l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin, la face d'entrée est également marquée par des cavités (figure 4.24), néanmoins de taille plus modeste bien que plus nombreuses.

La face de sortie, elle, ayant globalement toujours l'aspect initial de la roche, illustre bien le perçage de l'échantillon (en bas à gauche de la photo).

b) Densité radiologique et porosité

De même que pour l'échantillon S7 de calcaire des Estailades, nous avons imagé en 3D la porosité créée dans l'échantillon M1 par tomодensitométrie (figure 4.25), et représenté les profils de densité radiologique moyenne le long de l'échantillon avant et après injection de solution saturée en CO_2 (figure 4.26).

Le représentation en trois dimensions de la densité radiologique dans l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin de la figure 4.25 montre un réseau très dense de petits wormholes de faible longueur réunis en deux chemins de circulation préférentielle importants. Celui représenté en bas de l'image atteint la paroi de sortie (à droite) de l'échantillon.

La différence entre les courbes de densité radiologique après et avant expérience est représentée figure 4.27, et montre l'importante augmentation de porosité à l'entrée de l'échantillon



FIGURE 4.24 – *Face d'entrée (à gauche) et de sortie (à droite) de l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin après une semaine d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 10ml.min^{-1} .*

correspondant majoritairement aux chemins de circulation préférentielle visibles sur la représentation 3D de la figure 4.25. On note également une légère augmentation de porosité à partir de 12 *cm* jusqu'à la sortie de l'échantillon, avec la percée d'un chemin de circulation. On voit ici, contrairement à l'échantillon de calcaire des Estailades, que les courbes ne se croisent pas, et que l'on n'a donc pas eu de reprécipitation dans les pores de l'échantillon, ou tout du moins pas suffisamment pour compenser l'importante dissolution dans les wormholes.

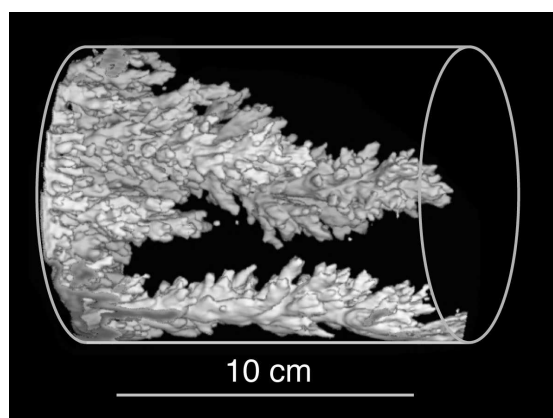


FIGURE 4.25 – *Représentation 3D de la porosité créée dans l'échantillon de calcaire de Saint Maximin, obtenue par tomographie.*

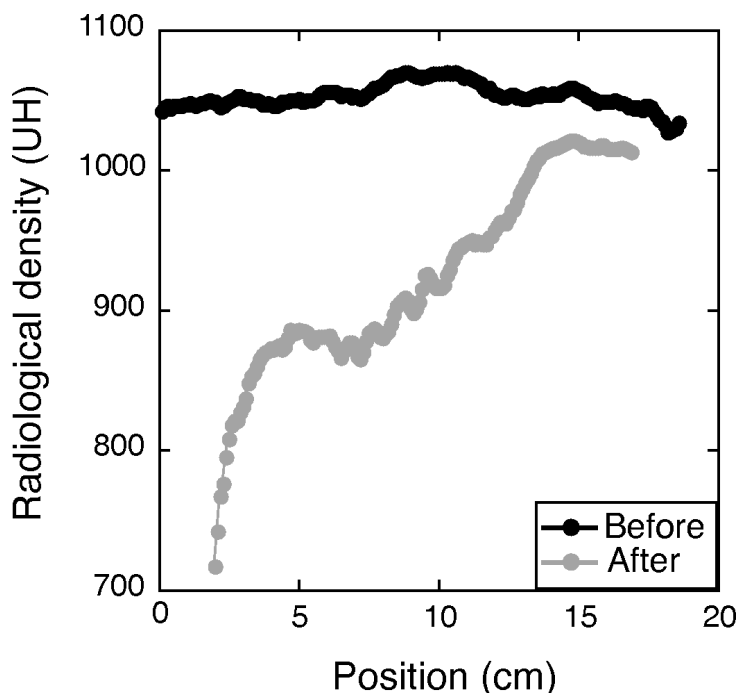


FIGURE 4.26 – Profil de densité radiologique moyenne de l'échantillon M1 par section le long de l'échantillon avant et après injection de CO_2 .

4.6.3 Discussion

La comparaison des profils de tomodesitométrie de l'échantillon S7 après et avant expérience (figure 4.23) permettent de mettre en évidence par une mesure indépendante la précipitation observée grâce à l'amplitude des ondes S mesurées le long de l'échantillon au cours de l'injection de fluide réactif. Ceci couplé à la représentation en trois dimensions des ramifications de chemins de circulation préférentielle développés dans l'échantillon par dissolution de calcite permet en effet d'interpréter les profils de rapports d'amplitude de la figure 4.16.

Comme indiqué dans le paragraphe 4.6.2, la densité radiologique en UH d'un échantillon rocheux obtenue par tomodesitométrie peut être convertie en porosité. Cependant, la calibration pour obtenir des porosités absolues n'est pas aisée. En effet, lors d'une tomographie effectuée à sec, nous savons qu'une porosité de 1 équivaut à $-1000UH$, la valeur de la densité radiologique de l'air (cf. paragraphe 3.1.1), mais nous ne disposons pas de valeur précise pour celle de la matrice rocheuse. Aussi il est impossible de tracer une simple droite de calibration entre les valeurs extrêmes de porosité 0 et 1, et une calibration à partir de différents échantillons, de porosité connue, et constitués majoritairement de calcite ne nous donnait qu'une valeur approchée. Nous avons donc utilisé la densité radiologique en relatif, pour observer la variation de porosité de S7, en comparaison à cette même grandeur obtenue par méthode sismique pendant l'expérience.

Pour ce faire, nous avons converti les valeurs de densité radiologique (DR) en porosité en établissant une loi de proportionnalité entre la valeur moyenne de la DR et $(1 - \phi_0)$, ϕ_0 étant

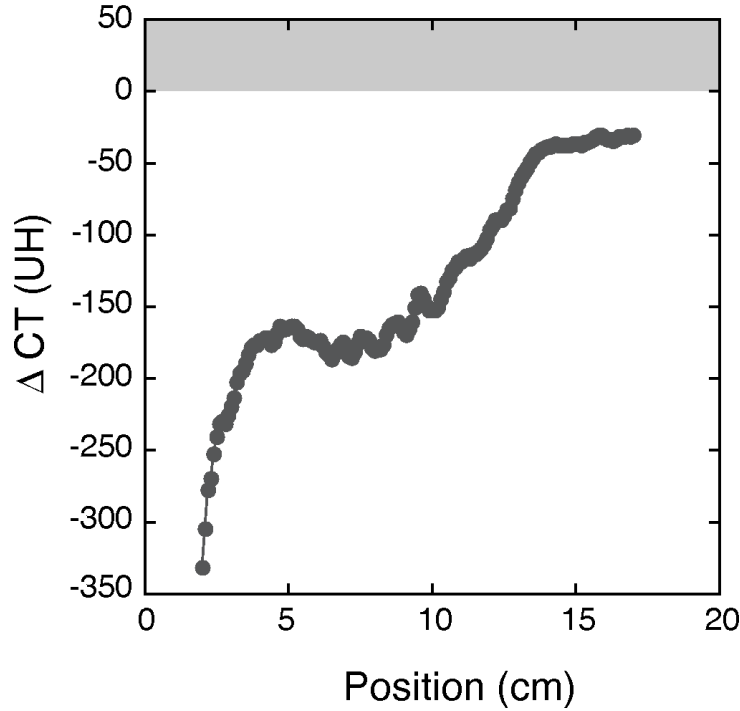


FIGURE 4.27 – Différence entre les profils de densité radiologique de l'échantillon M1 après injection de CO_2 et avant.

la valeur de porosité de l'échantillon lors de sa caractérisation initiale, soit ici $\phi_0 = 0,286$. On obtient ainsi les courbes de la figure 4.28.

On remarque tout d'abord que les valeurs moyennes sont égales, avec la valeur moyenne de la variation de porosité calculée par méthode sismique $\langle \delta\phi_{Wyllie} = 0,028 \rangle$ égale à celle calculée par la mesure de densité radiologique $\langle \delta\phi_{TDM} = 0,028 \rangle$. Ceci est conséquence de la méthode de conversion et aucune conclusion ne peut en être faite concernant la validité de l'une ou l'autre valeur absolue. Cependant les variations de porosité sont assez proches si on considère la différence entre ces deux méthodes. Les mesures sismiques sont effectuées avec des transducteurs piézométriques centimétriques et explorent une région beaucoup plus large de l'échantillon que la TDM. Il est donc normal que les principales variations soient lissées, moyennées en position sur la courbe en figurés blancs de la figure 4.28 en comparaison de celles de la courbe noire. De plus la cellule maintenant l'échantillon lors des expérience empêche une exploration sismiques des premiers et derniers centimètres de l'échantillon ce qui contribue à expliquer les divergences aux extrémités.

L'échantillon S7 de calcaire des Estailades suggère donc une précipitation observée macroscopiquement grâce à la mesure des amplitudes des ondes S pendant l'injection, et confirmée par la caractérisation post-expérience par TDM.

Il serait intéressant de confirmer et localiser cette phase de calcite secondaire à l'échelle du pore. Pour ce faire, nous avons étudié la microstructure du calcaire des Estailades, en comparant

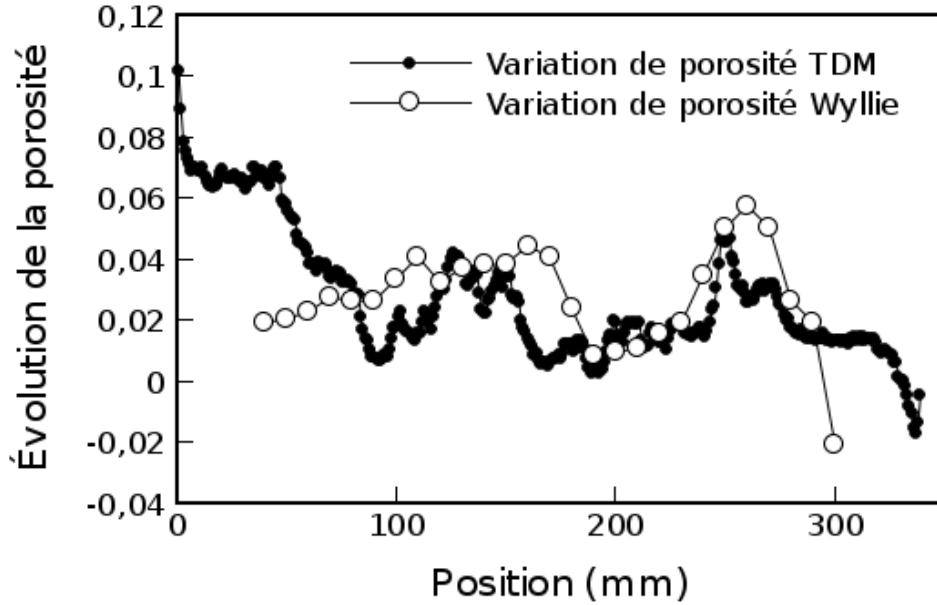


FIGURE 4.28 – Évolution de la porosité au cours des injections de fluide saturé en CO_2 dans l'échantillon de calcaire des Estailades S7. En blanc l'évolution de porosité mesurée *in situ* grâce aux vitesses des ondes P et la loi de Wyllie. En noir l'évolution de porosité obtenue d'après les profils de tomodesitométrie.

des lames minces d'un échantillon témoin et d'autres de la roche ayant subi l'injection de CO_2 , par deux méthodes de microscopie : le MEB et la cathodoluminescence.

4.7 Essai de caractérisation minéralogique de la calcite néoformée

Lors des expériences d'injection d'eau saturée en CO_2 dans l'échantillon de calcaire des Estailades (S7), présentées dans les parties précédentes, les mesures géophysiques ainsi que la caractérisation post-expérimentale ont mis en évidence la formation probable d'une phase de calcite néoformée. En effet, les profils de rapports d'amplitude des ondes sismiques acquis le long de l'échantillon S7 nous font penser à l'avancée d'un front de précipitation précédant le front de dissolution, observation confirmée indépendamment par la tomographie au scanner à rayons X après expérience.

En fin d'expérience, nous avons tenté de visualiser directement cette calcite néoformée en utilisant la microscopie électronique à balayage (MEB) sur des lames minces et fragments de l'échantillon S7, puis la cathodoluminescence. Ces mesures ont été effectuées au sein du laboratoire de géologie de l'ENS, avec Damien Daval, pour le MEB, et au sein du laboratoire Biominéralisations et Paléoenvironnements de l'université Paris VI, avec Marc de Rafélis, pour la cathodoluminescence.

4.7.1 MEB

L'identification de cette nouvelle phase de calcite en utilisant le MEB est très délicate, puisque l'échantillon est initialement formé de plus de 99% de calcite, celle-ci existant sous la forme de bioclastes ou de ciment micritique (cf. chapitre 4.1). Cependant, nous espérons que la comparaison de lames minces prélevées sur l'échantillon S7 après expérience, et un échantillon témoin (WZ1) du même calcaire des Estaillades avant injection permettra d'observer des structures pouvant clairement être identifiées comme des auréoles de calcite secondaires.

4.7.1.1 Principe de fonctionnement du microscope électronique à balayage (MEB)

Un microscope électronique à balayage (MEB) permet d'obtenir une image d'un échantillon microscopique à partir de l'interaction d'un faisceau d'électrons avec la matière constituant l'échantillon.

Sous vide, le faisceau d'électrons est focalisé par des lentilles électromagnétiques sur l'objet étudié, et déplacé ligne par ligne pour balayer une surface rectangulaire d'étude. La tension d'accélération des électrons est ajustable, et détermine le volume de la zone de l'interaction entre le faisceau électronique et la matière, ainsi que l'énergie des électrons produits par l'échantillon en conséquence de son bombardement (Perrin, 2007).

Lors de cette étude, nous avons utilisés les électrons secondaires (SE) et rétrodiffusés (BSE).

Les électrons secondaires sont des électrons de l'échantillon éjectés par le bombardement du faisceau électronique par interaction inélastique. Ces électrons faiblement énergétiques ne s'échappent de l'échantillon que s'ils sont émis près de sa surface, et sont donc particulièrement sensibles à sa topographie. Ils sont détectés par un scintillateur associé à un photomultiplicateur, convertissant ainsi les électrons en photons par effet photoélectrique.

Les électrons rétrodiffusés (BSE) sont produits lors du choc élastique entre le faisceau incident et le noyau des atomes du matériau constituant l'échantillon. Le noyau ne subissant pas de recul, la perte d'énergie est négligeable et l'angle de rétrodiffusion très proche de 180° avec le faisceau initial. Le pourcentage d'électrons rétrodiffusés est directement proportionnel à la masse atomique des éléments, et permet ainsi de connaître les quantités d'éléments lourds dans l'échantillon observé. Ils sont ensuite traduits grâce à des détecteurs constitués de cristaux semi-conducteurs, les électrons hautement énergétiques y engendrant des formations de paires électron-trou.

4.7.1.2 Etude de l'échantillon témoin

Cette étude au MEB de l'échantillon témoin a été effectuée à partir d'une lame mince métallisée à l'or. Nous avons effectué de l'imagerie en SE et BSE, mais la topographie ne pouvant

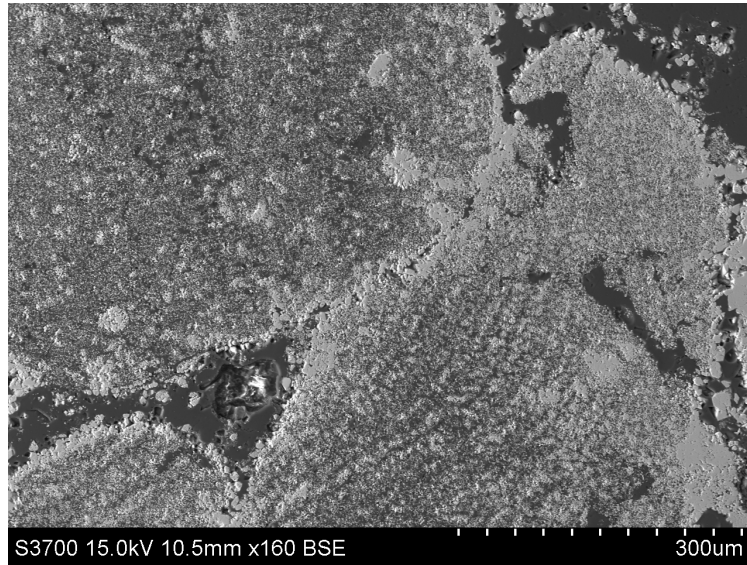


FIGURE 4.29 – Zone de porosité intergranulaire avant injection. MEB à 15kV en électrons rétro-diffusés (BSE).

nous apporter d'informations décisives concernant la précipitation, comme nous le discuterons plus avant dans ce chapitre, seuls quelques clichés en BSE sont présentés ici.

La figure 4.29 représente un détail de la lame mince, avec notamment les zones de cimentation intergranulaire, à différents stades d'altération.

La figure 4.30 est un agrandissement en BSE de la zone de jonction intergranulaire située dans le quart bas-gauche de la photo, avec les zones d'étude choisies pour vérifier les compositions minéralogiques des grains et du ciment.

La différence entre les deux spectres de la figure 4.31 réside principalement dans la raie du carbone présente dans le second cas. Celle-ci correspond à la résine de la lame mince, et met simplement en évidence la plus importante porosité du grain par rapport au ciment, plus dense. Sinon on retrouve sur les deux spectres la présence de calcium et d'oxygène, signature de la calcite.

À plus fort grossissement, la figure 4.32 présente une cavité dans un grain comportant une auréole de calcite de morphologie visuellement différente. Nous avons effectué un *linescan* le long de la flèche représentée sur l'image de gauche, afin de mesurer la composition des différentes phases présentes, et d'observer une éventuelle composition différente causée par une précipitation de calcite néoformée. Les courbes de la partie droite de la figure 4.32 représentent ainsi le profil de quantification (en coups) de l'oxygène (O), du calcium (Ca), et du magnésium (Mg) le long de la flèche jaune. L'observation de ces courbes, et plus particulièrement du profil de calcium, permet de différencier trois domaines entre 0 et 40 μm :

- Tout d'abord la zone sans calcium, qui correspond à la "résine" de fond de lame, entre 0 et

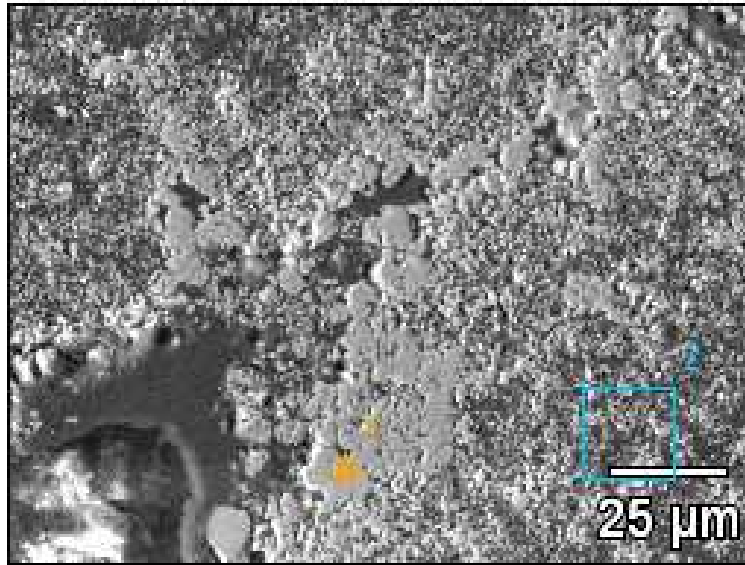


FIGURE 4.30 – Détail de la zone représentée figure 4.29, avec deux zones d'analyse, la 1 (en jaune), ponctuelle, dans le ciment entourant un grain, et la 2 (en bleu), plus étendue, dans le grain.

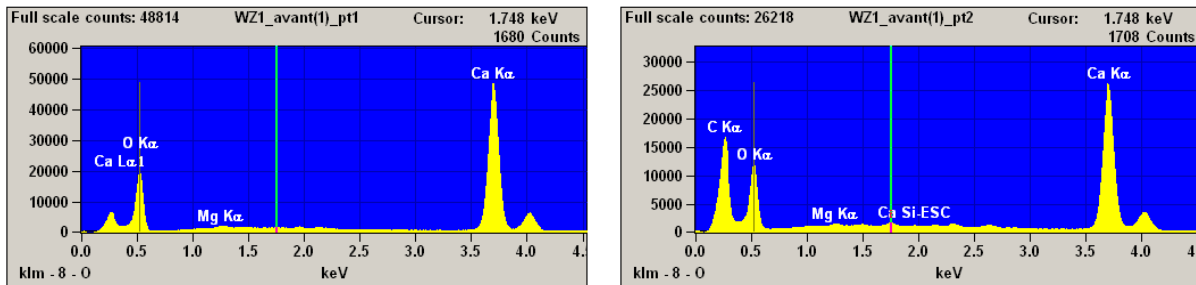


FIGURE 4.31 – À gauche, spectre de la zone d'étude 1 de la figure 4.30. À droite, spectre de la zone d'étude 2 de la figure 4.30.

10 μ m. La mesure se fait dans le pore.

- Vient ensuite un palier entre 10 et 25 μ m, qui constitue l'auréole de calcite. Le palier est assez stable en ce qui concerne les trois éléments, on est dans une calcite constituée de gros cristaux (sparite).
- Enfin intervient un palier plus bruité, entre 25 et 40 μ m, correspondant à la micrite très fine, avec sa porosité intergranulaire. En effet, le bruit s'explique par la présence de zones poreuses où l'influence de la résine sur le signal apparaît à nouveau. De plus, on peut remarquer que le niveau moyen de calcite y est un peu plus faible que dans l'auréole sparitique, tandis que l'oxygène varie autour de la même valeur, étant également présent dans la résine.

L'observation du magnésium montre peu de variation, avec un rapport Mg/Ca moyen constant sur le profil avec une valeur de 0,92%.

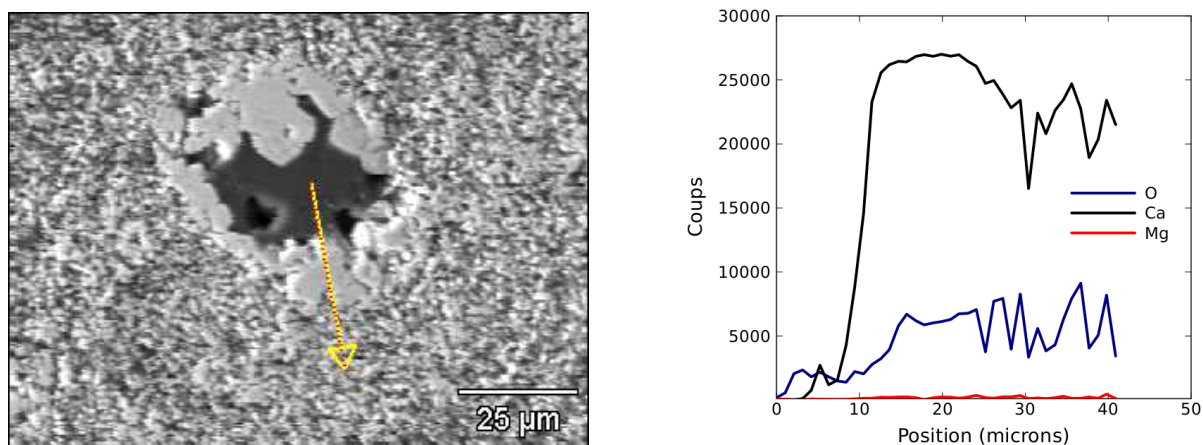


FIGURE 4.32 – *A gauche : Détail d'une cavité dans un grain comportant une auréole de calcite. Étude spectrale d'un profil suivant la flèche jaune. A droite : Pourcentages atomiques correspondant à ce profil.*

4.7.1.3 Etude de l'échantillon après injection

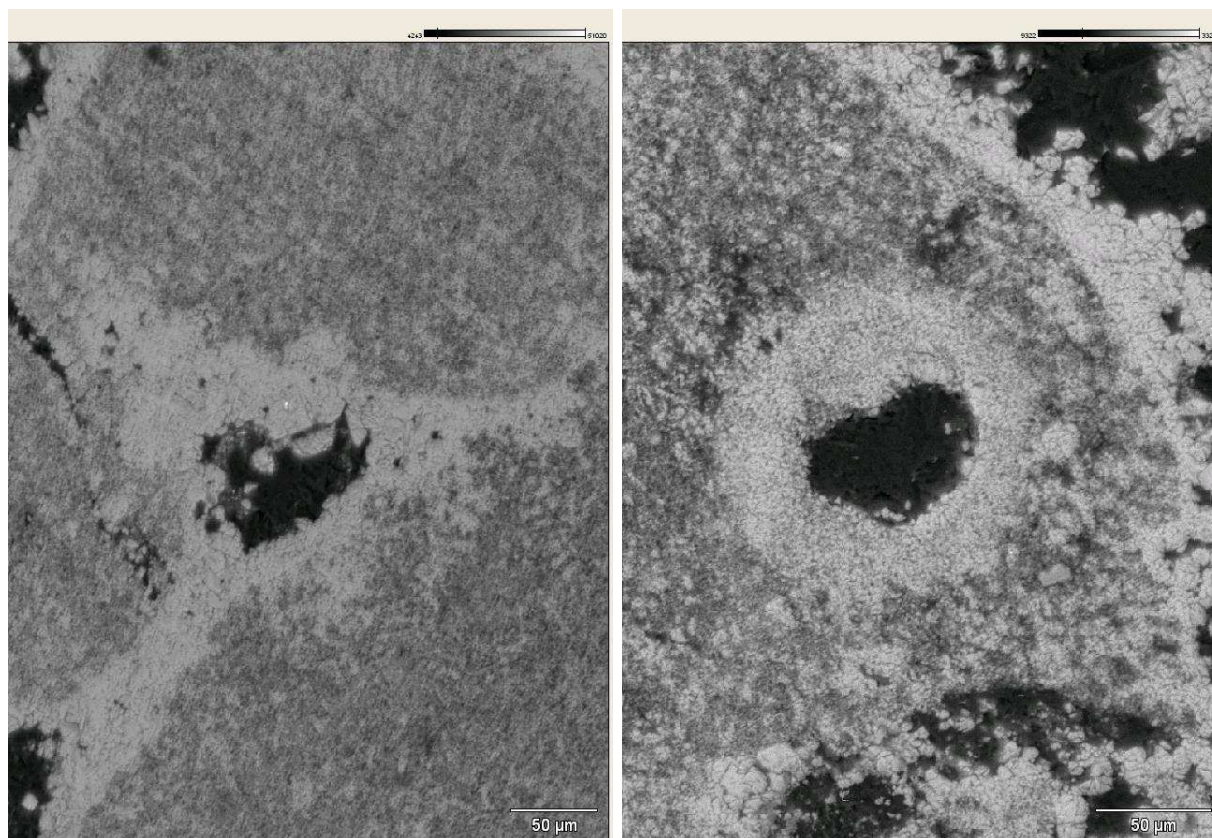


FIGURE 4.33 – *Deux zones de possible précipitation de calcite. Ciment entre les grains (à gauche), et dans une cavité creusée dans un grain (à droite).*

Les images en SE de la figure 4.33 représentent deux cavités de l'ordre de $50\mu\text{m}$ observées dans l'échantillon après circulation du fluide riche en CO_2 , et représentatives des motifs présents

sur l'ensemble des lames observées. La première (à gauche) est située à la zone de contact entre trois grains, et présente un abondant ciment calcitique intergranulaire, avec de gros cristaux de sparites. Ce ciment paraît plus épais et envahit d'avantage les grains que sur les images de la lame témoin. À droite, on observe également du ciment autour d'un grain, mais également en son sein, avec une cavité creusée dans le grain, auréolée de micrite. La figure 4.34 montre également une zone de jonction entre deux grains, avec le ciment intergranulaire et un cristal de sparite de $50\mu m$ (triangulaire).

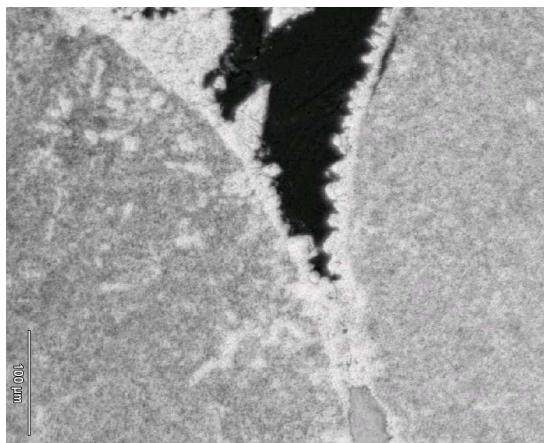


FIGURE 4.34 – *Porosité intergranulaire. Détail : cristal de sparite de $50\mu m$.*

L'observation de ces images ne permet cependant pas de conclure à une éventuelle précipitation induite par l'injection de CO_2 , le ciment pouvant être un ciment original dissout, ou même un précipitation d'origine diagénétique.

Afin d'essayer de discriminer ces deux différentes origines, il est intéressant de comparer le pourcentage de magnésium présent dans le ciment, la calcite néoformée devant être plus pure qu'une calcite diagénétique initialement potentiellement magnésienne. En calculant sur chaque série de spectres la moyenne des rapports Mg/Ca , on obtient deux valeurs très faibles de teneur en magnésium. Ces valeurs, de 0,0092 initialement, et 0,0086 après injection, sont du même ordre de grandeur, et ne permettent pas de conclure à une éventuelle différence de composition du ciment observé.

4.7.2 Cathodoluminescence

4.7.2.1 Principe

La cathodoluminescence est un phénomène apparaissant lors de l'interaction d'électrons fortement énergétiques (quelques keV à quelques dizaines de keV) avec un cristal. Ce dernier émet lors de sa désexcitation une radiation lumineuse dans le domaine visible, caractéristique soit de la nature du réseau cristallin, soit de la présence d'impuretés s'étant substituées à certains éléments

de ce réseau.

La microscopie par cathodoluminescence emploie ainsi un microscope optique et un canon à électrons, et permet d'observer une luminescence orangée dans le cas de calcite présentant des traces de manganèse (Mn). En effet, de très faibles quantités de cet élément peuvent être détectées par cette méthode, quelques cations divalents Mn^{2+} se substituant aux ions Ca^{2+} dans le réseau de la calcite. Le carbonate de manganèse ainsi formé est excité par le bombardement électronique, et sa désexcitation émet une radiation orangée (Amieux, 1982).

4.7.2.2 Etude de l'échantillon témoin

La figure 4.35 donne, à gauche, une vue au microscope optique, en lumière naturelle, de la porosité du calcaire des Estailades avant injection de CO_2 . On voit que celle-ci est déjà importante, et principalement intergranulaire. En cathodoluminescence, à droite, le niveau global de l'image est très faible, avec une légère irradiation orangée diffuse autour des grains (principalement en bas de l'image) caractéristique de l'eau de formation du ciment intergranulaire lors de la diagénèse.

A plus fort grossissement (cf. figure 4.36), on peut observer tout d'abord en optique la nature du ciment intergranulaire, constitué de micrite et de microsparite, ainsi que la porosité intergranulaire. En cathodoluminescence, l'image 4.36 montre principalement un minéral pris dans le ciment (en haut à gauche), et le niveau global d'émission est ici encore très faible. On peut néanmoins distinguer quelques auréoles orangées autour de cristaux de sparite, possibles témoins d'une circulation de fluide pendant la formation de ce calcaire.

4.7.2.3 Etude de l'échantillon après injection

Il est intéressant de comparer les images de la figure 4.37 à celles de la figure 4.35. En effet, si l'on voit à l'échelle de la lame que la roche après expérience est plus poreuse, avec notamment les « trous » créés par les chemins de circulation préférentielle, ceci n'est pas forcément flagrant en microscopie optique au grossissement $\times 5$. En revanche, en cathodoluminescence, pour un même temps de pose de 10 secondes sur le même microscope dans les mêmes conditions, l'image est nettement plus lumineuse. Le pourtour des grains apparaît constellé d'une calcite émettant fortement dans l'orange, et les grains eux-mêmes sont bien plus colorés.

À plus fort grossissement, comme sur les images des figures 4.38 et 4.39, on retrouve cette luminosité globale supérieure, et on peut distinguer les anguleuses auréoles de croissance des cristaux de calcite secondaire dans le ciment intergranulaire.

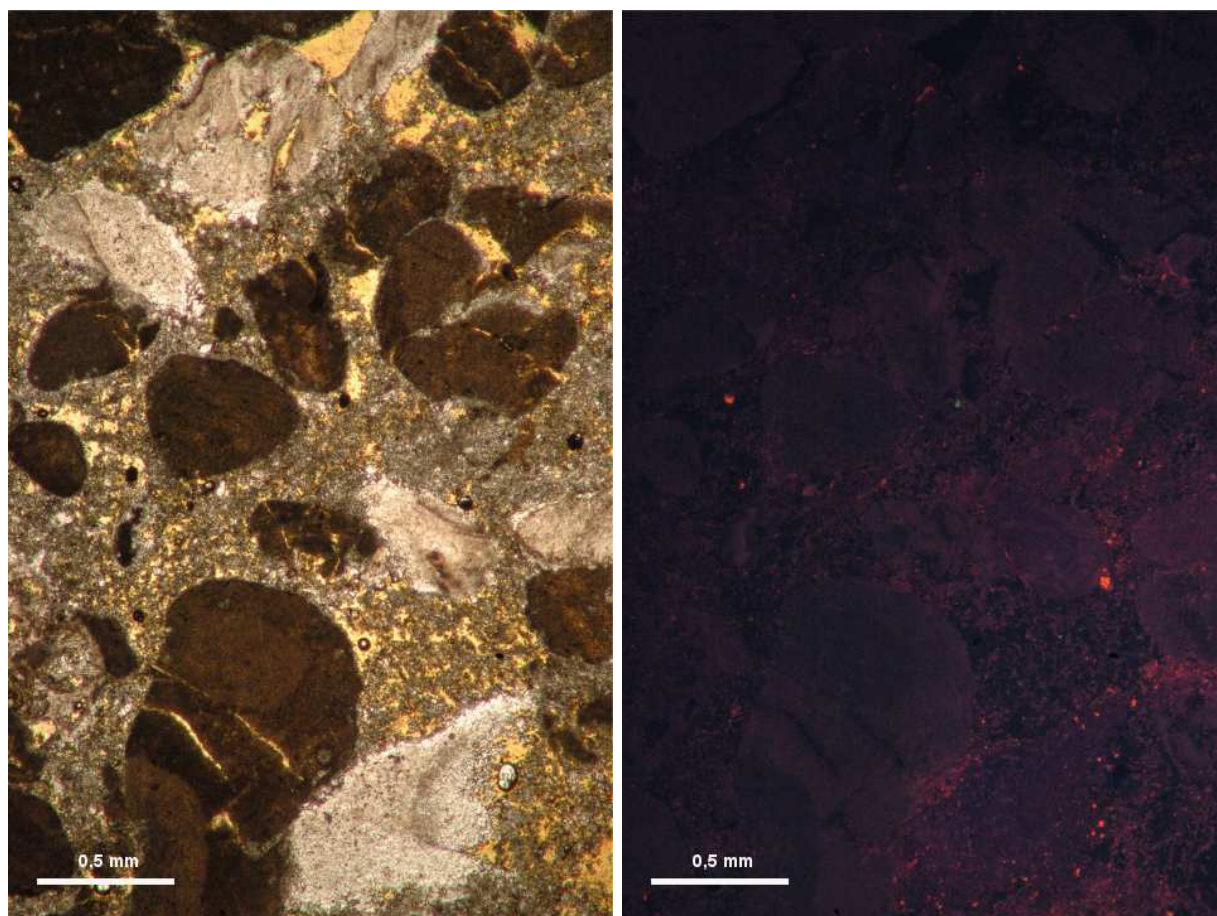


FIGURE 4.35 – *Lame témoin de calcaire des Estailades en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10⁴) (à droite).*

4.7.2.4 Discussion

La porosité des lames d'échantillon témoin et d'échantillon après injection de CO_2 ne semblent pas très différentes sur les images optiques éclairées, à l'instar des observations au MEB. En revanche, l'observation de la cathodoluminescence de ces lames (photographies numériques avec 10⁴ de temps de pose) nous permet de noter des différences.

Tout d'abord, le niveau global de luminosité est très différent pour un même temps de pose, l'échantillon témoin paraissant moins luminescent que l'échantillon après expérience.

Cependant, on remarque que cette différence de luminosité globale est valable sur l'ensemble de chaque image, y compris dans les grains, et ceci ne peut s'expliquer par une précipitation de calcite. Cette variation de luminosité entre les deux séances de microscopie par cathodoluminescence doit d'avantage s'expliquer par la nature de la source d'énergie, le canon à électrons. Les réglages de tension et d'intensité peuvent avoir différé légèrement et expliqueraient seuls ce phénomène.

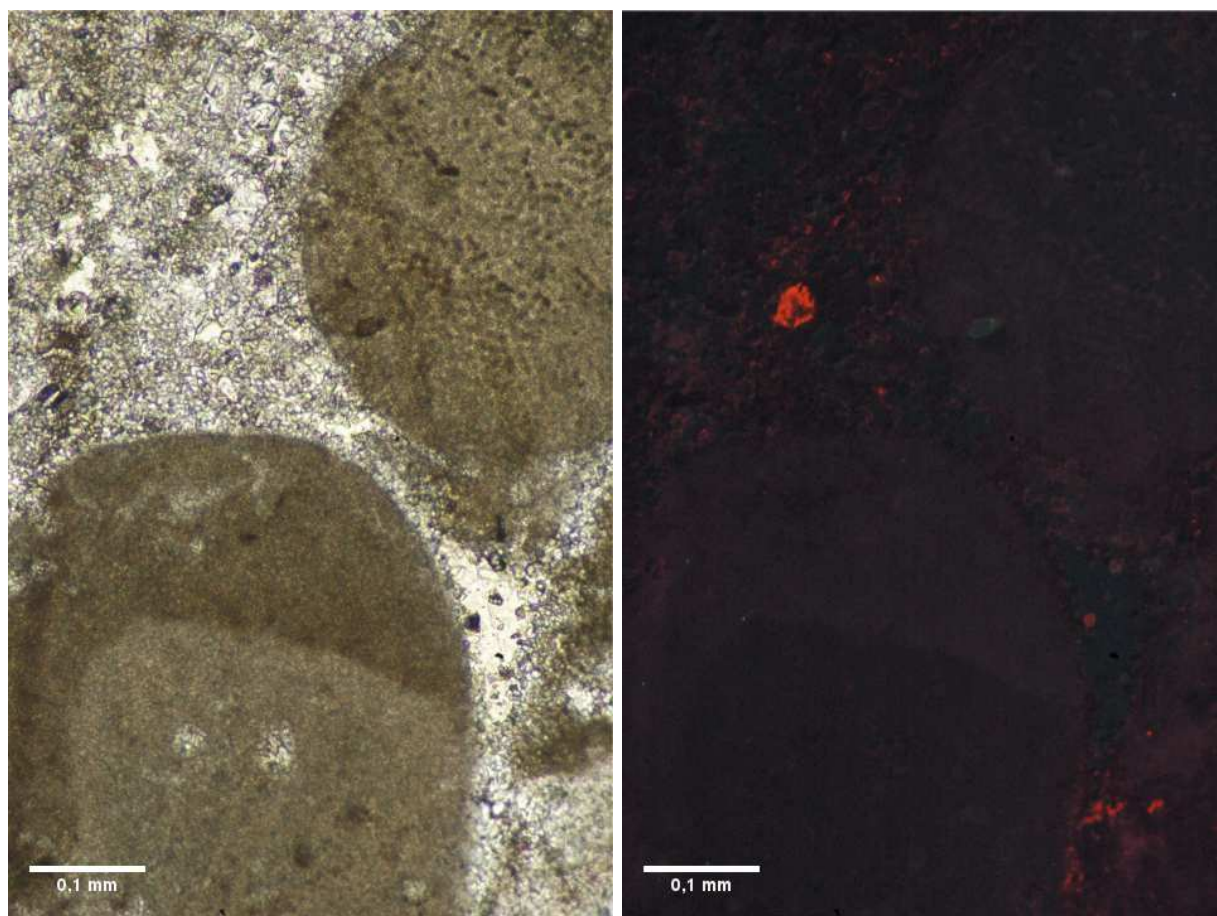


FIGURE 4.36 – *Lame témoin de calcaire des Estailades en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10⁴) (à droite).*

Ensuite, sur certains clichés à fort grossissement on voit de fortes franges de luminescence autour de gros cristaux de sparite, figures typiques d'une précipitation de calcite. La difficulté revient à situer cette précipitation dans l'histoire de l'échantillon. Celle-ci peut être diagénétique aussi bien qu'induite par l'expérience de percolation réactive. L'échantillon témoin étant une lame issue de la même carotte et non le même échantillon avant injection, le fait d'observer des franges luminescentes sur une lame et non sur l'autre ne permet pas de conclure de manière catégorique.

De plus, si l'on observe la région photographiée sur la figure 4.39 (en haut), on remarque la présence du même type de sparite de grande taille entourée d'une auréole luminescente, mais noyée dans une sparite plus petite forcément ultérieure, et non en bordure de grains cette fois.

Cette méthode ne permet ainsi pas de caractériser à l'échelle du pore la précipitation observée macroscopiquement. Le problème principal est l'observation de lames différentes, et l'impossibilité d'observer la même zone avant et après injection de CO_2 . Cependant cette méthode pourrait être prometteuse en prévoyant un protocole expérimental adapté, avec par exemple l'emploi d'un traceur. Par exemple, en ajoutant une faible quantité de manganèse à la solution injectée, on

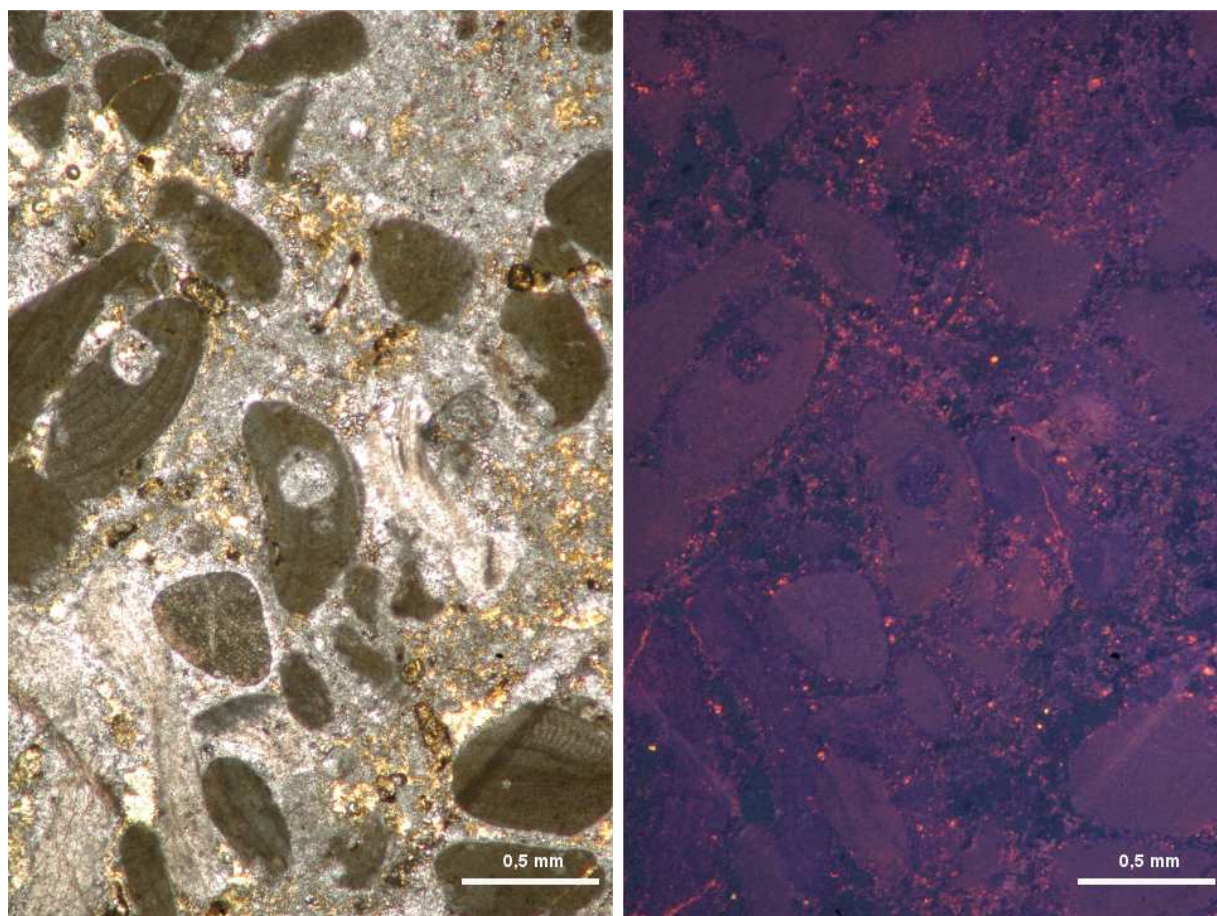


FIGURE 4.37 – Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^4) (à droite).

pourrait, en cas de précipitation, observer directement des franges lumineuses beaucoup plus franches, et localiser précisément la calcite précipitée.

4.8 Conclusions

Le tableau 4.6 est la synthèse des valeurs des variations de porosité obtenues par les trois différentes méthodes pour les deux échantillons. La méthode dite électrique correspond à l'évolution du facteur de formation convertie en évolution de porosité par la loi d'Archie. La méthode sismique est le résultat obtenu par la mesure des profils de vitesses des ondes P au cours des expériences, avec une conversion en porosité d'après une loi empirique adaptée, la formule de Wyllie pour le calcaire des Estailades, celle de Raymer pour le calcaire de Saint-Maximin. La méthode chimique est le calcul de la variation totale de porosité de chaque échantillon par la mesure de la concentration en $[Ca^{2+}]$ en sortie de percolation, rapportée à la masse de l'échantillon avant et après expérience.

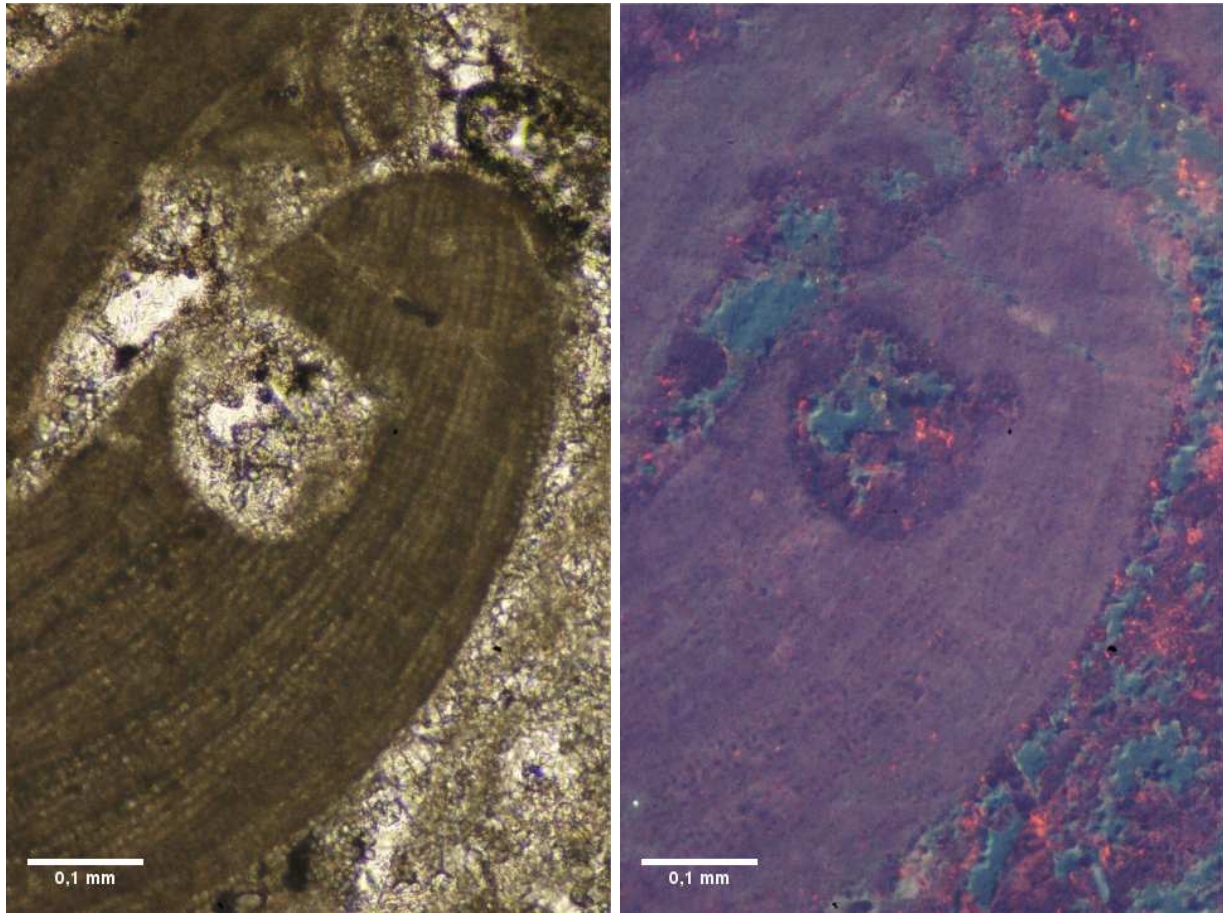


FIGURE 4.38 – Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).

Après vingt-huit jours d'injection d'eau riche en CO_2 dans l'échantillon de calcaire des Estailades, la perméabilité de la roche a augmenté d'un ordre de grandeur, de 180 mD à 1 D , tandis que sa porosité augmentait de $2,7\%$ environ. Cette dernière valeur a été estimée aussi bien chimiquement que grâce aux observables géophysiques que sont les vitesses sismiques et le facteur de formation électrique. Cette expérience nous a ainsi permis de montrer que la mesure de la vitesse et de l'atténuation des ondes P et S par transmission le long d'un échantillon donne accès à l'état de la porosité en temps réel en tout point de la roche. Ceci a été confirmé par la caractérisation après expérience par tomodesitométrie.

Échantillon	$\delta\phi_{chim}$	$\delta\phi_{elec}$	$\delta\phi_{sism}$
Estailades	$+(2,6 \pm 0,3)\%$	$+(2,7 \pm 0,2)\%$	$+(2,8 \pm 0,7)\%$
Saint-Maximin	$+(1,6 \pm 0,3)\%$	$+(1,7 \pm 0,7)\%$	$+(1,7 \pm 0,7)\%$

TABLE 4.6 – Evolutions de la porosité des deux échantillons calculées par les trois méthodes : chimique, électrique, et sismique. $\delta\phi_{sism}$ est calculé grâce à la formule de Wyllie pour S7 et grâce à celle de Raymer-Hunt-Gardner pour M1 en raison de leurs porosités différentes et de leurs coefficients de cimentation différents.

Nous avons effectué la même expérience pour un échantillon de calcaire de Saint-Maximin, plus homogène. Ici, les valeurs de variation de porosité totale obtenues avec les méthodes chimiques et électriques sont équivalentes, et la méthode sismique donne une valeur surestimée si l'on utilise la formule de Wyllie. En revanche, l'utilisation de la formule empirique de Raymer-Hunt-Gardner permet d'obtenir un très bon résultat par cette méthode également. On remarque de plus que l'homogénéité de l'échantillon permet d'obtenir des courbes peu bruitées en comparaison avec celles de l'échantillon des Estailades plus hétérogène.

La caractérisation par déplacement miscible avant et après expérience de l'échantillon S7 a permis de mettre en évidence la création d'hétérogénéités très importantes dans l'échantillon, de chemins de circulation préférentielle ou *wormholes* de grande dimension. Ceux-ci ont contribué à l'augmentation de perméabilité d'un ordre de grandeur en conduisant la majorité du fluide injecté, réduisant ainsi considérablement son temps de résidence au sein de l'échantillon. Ces chemins de circulation préférentielle avaient déjà été détectés lors de l'observation de l'ouverture de nouveaux domaines de porosité grâce aux courbes de vitesse des ondes P partie 4.4.1, et grâce à la forte baisse d'amplitude lors du tracé des profils de rapport d'amplitude. La tomodesitométrie a permis de les représenter en 3 dimensions, et de confirmer leur étendue et leurs dimensions, avec des diamètres de l'ordre de quelques millimètres. Leur niveau d'avancée au sein de l'échantillon coïncidait bel et bien avec celui suggéré par l'avancée du front observé sur les courbes de rapports d'amplitude des ondes S pour S7 (partie 4.5), qui a déterminé la date d'arrêt de l'expérience.

Pour l'échantillon M1, on n'a constaté la création de chemins de circulation préférentielle qu'en toute fin d'expérience, quand un de ces wormholes a atteint la face de sortie de l'échantillon. En effet, à ce moment le pH, le facteur de formation électrique et l'alcalinité ont fortement diminué, montrant la fin de l'état stationnaire de la réaction de dissolution de la calcite. Le fluide était conduit rapidement à travers ce large conduit hors de l'échantillon, réduisant ainsi son temps de résidence au sein de la roche. De plus, la perméabilité a alors atteint des valeurs très importantes avec un fort bruit, en raison de la résolution insuffisante des capteurs de pressions pour des gradients aussi faibles.

Enfin, nous avons mis en évidence une précipitation de calcite dans l'échantillon de calcaire des Estailades, observable sur les courbes de rapport d'amplitude, et confirmées par le scanner à rayons X dans la partie de l'échantillon non atteinte par les chemins de circulation préférentielle. La caractérisation de cette précipitation par microscopie n'a en revanche pas été possible de manière définitive. En effet, aussi bien par MEB que par cathodoluminescence, on observe différentes morphologies de calcite au sein de cet échantillon. Si la présence d'une calcite secondaire est évidente, on ne peut discriminer de manière certaine son origine, diagénétique ou induite par l'injection de CO_2 . Ni la composition de la calcite obtenue par le MEB, ni la luminescence des cristaux observés en cathodoluminescence n'ont permis d'apporter cette information de manière concluante. Une méthode qui devrait permettre de conclure à ce propos serait une observation par cathodoluminescence après injection de fluide riche en CO_2 et contenant un peu de manganèse. Ce traceur se fixerait dans la calcite, les ions Mn^{2+} prenant la place d'ions Ca^{2+} dans une fraction des cristaux néoformés, et créant des auréoles facilement distinguables.

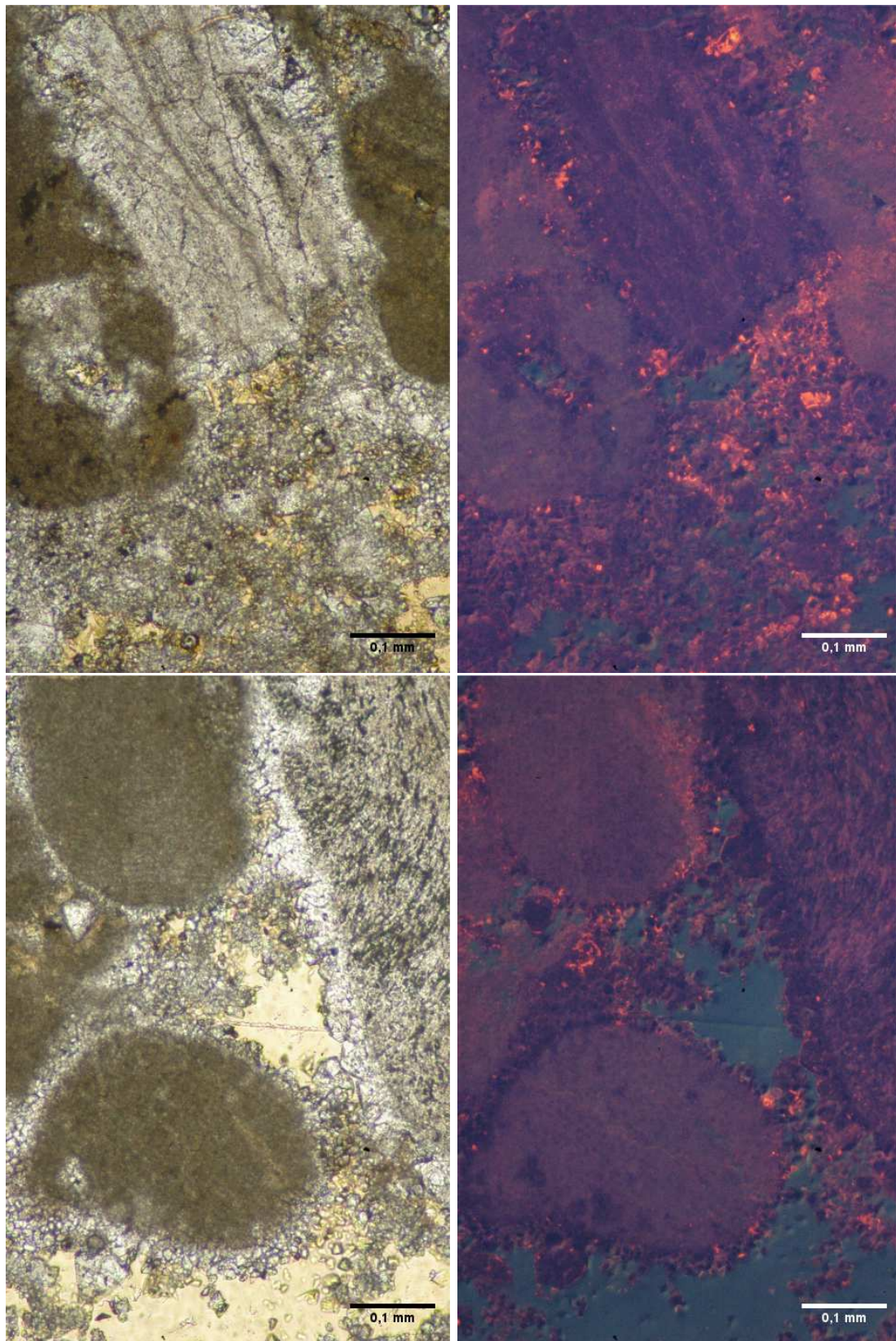


FIGURE 4.39 – Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).

Troisième partie

Expériences en milieu granulaire

Chapitre 5

Suivi géoélectrique d'injections de fluides réactifs en milieu granulaire

Pour aborder une échelle supérieure et travailler en milieu granulaire, nous avons construit un modèle réduit de réservoir. Il s'agit d'une cuve cylindrique de 47cm de diamètre intérieur et 81cm de profondeur (figure 5.4). Cette cuve est destinée à la réalisation d'expériences d'injection d'eau saturée en CO_2 en milieu granulaire réactif (calcite), ou d'une eau saturée en calcium dans un sable de Fontainebleau (quartz), et à suivre les effets de l'injection par l'intermédiaire de méthodes géoélectriques. Ces méthodes sont la tomographie de résistivité électrique 3D et la mesure du potentiel spontané (PS). Le PS permet, d'une part, de suivre l'injection du fluide, e.g. (Perrier *et al.*, 1998 ; Darnet, 2003), et, d'autre part, une fois le fluide injecté, de mettre en évidence les modifications des propriétés de la surface des grains sous l'effet de la dissolution/précipitation de la calcite. En effet, le potentiel ζ des grains de quartz (milieu granulaire) et de la calcite précipitée sont différents, ce qui change l'effet électrocinétique (Guichet, 2002)

Les méthodes électriques, PS et Tomographie de Résistivité Électrique (ERT), sont des méthodes géophysiques classiques pour l'imagerie du sous-sol (Samouëlian *et al.*, 2005). Le PS permet notamment de suivre les écoulements de fluide en milieu poreux, notamment grâce à l'effet électrocinétique, e.g. (Nourbehecht, 1963) et au potentiel de diffusion (Maineult *et al.*, 2005). L'effet électrocinétique associe un gradient de potentiel électrique à tout gradient de pression lors d'un écoulement en milieu poreux. L'ERT, qui est une méthode active, contrairement à la méthode de PS, consiste en la mesure de la réponse en tension à une injection de courant selon une géométrie maîtrisée, et donne accès à la distribution spatiale de la résistivité électrique dans le matériau ou terrain d'étude.

Afin de calibrer au préalable ces méthodes qui pourraient servir à la surveillance d'un site de stockage géologique du dioxyde de carbone, nous avons construit un dispositif à une échelle quasi-métrique, afin d'effectuer un suivi géoélectrique d'injections de fluide réactif en milieu granulaire. La taille submétrique de « l'échantillon » de milieu granulaire choisi demande d'adapter ces méthodes, avec notamment la fabrication d'électrodes miniatures spécifiques.

Dans ce chapitre sont présentés d'abord les principes des méthodes électriques de mesure du PS et l'ERT, puis le dispositif expérimental et les outils développés. Enfin, nous présentons partie 5.4 les résultats préliminaires de suivi géoélectrique par ERT et PS d'une injection d'eau salée dans un sable de Fontainebleau saturé en eau.

5.1 Le Potentiel Spontané (PS)

Le signal PS est le potentiel électrique naturel du sous-sol. Il est mesuré avec des électrodes impolarisables, e.g. (Petiau et Dupis, 1980). Ce signal est la somme de différentes contributions, dont les principales sont les potentiels électrocinétiques, e.g. (Ishido et Mizutani, 1981 ; Revil *et al.*, 1999a ; Revil *et al.*, 2003 ; Revil *et al.*, 2004), les potentiels d'électrodiffusion, e.g. (Maineult, 2004 ; Maineult *et al.*, 2006), et ceux générés par des réactions d'oxydoréduction, e.g. (Naudet et Revil, 2005). Cette méthode trouve donc logiquement des applications dans de nombreux domaines en sciences de la terre, de l'exploration minière au suivi de polluants, e.g. (Naudet *et al.*, 2003 ; Naudet *et al.*, 2004), pour la physique des roches e.g. (Revil et Glover, 1997 ; Revil et Glover, 1998 ; Lorne *et al.*, 1999a ; Lorne *et al.*, 1999b), pour la physique des sols, e.g. (Guichet *et al.*, 2003), pour l'étude du volcanisme, e.g. (Byrdina *et al.*, 2003), celle de la géothermie, e.g. (Revil *et al.*, 1999b), ainsi que pour diverses applications visant à caractériser les écoulements en hydrogéologie, e.g. (Perrier *et al.*, 1998 ; Darnet, 2003). Cet outil est envisagé pour la surveillance de sites de stockage de CO_2 (Moore *et al.*, 2004) sous réserve que les signaux soient d'assez forte amplitude.

5.1.1 Principe de la méthode et origine du PS

5.1.1.1 Les différents potentiels électriques

Les phénomènes électromagnétiques terrestres peuvent être classés en deux catégories, les phénomènes de source externe, et ceux d'intérêt géophysique.

Les phénomènes électromagnétiques externes

Les courants d'origine anthropique :

Il s'agit principalement du courant de fréquence 50 Hz en France, dû au bruit industriel, et aux courants électriques ménagers. Ces courants sont aisément filtrables mais génèrent des anomalies importantes, pouvant atteindre plusieurs dizaines de millivolts par mètre.

L'induction magnétotellurique :

Il s'agit des courants générés par les variations temporelles du champ magnétique terrestre. Ces fluctuations ont différentes origines : interaction irrégulière du vent solaire avec la magnétosphère,

orages atmosphériques, orages magnétiques... Les courants induits par ces phénomènes génèrent des différences de potentiel de l'ordre de quelques millivolts à quelques dizaines de millivolts par kilomètre (Telford *et al.*, 1976 ; Marquis *et al.*, 2002).

Les phénomènes électromagnétiques d'intérêt géophysique

L'oxydoréduction :

Un corps conducteur enterré qui établit un lien entre les couches supérieures oxygénées du sol et les couches profondes anoxyques produit un phénomène de géobatterie. Un tel corps peut alors être à l'origine d'anomalies de potentiel électrique en surface pouvant atteindre plusieurs volts. Ce phénomène est celui qui est à l'origine de l'utilisation des mesures de potentiel pour l'exploration minière (Sato et Mooney, 1960 ; Telford *et al.*, 1976).

L'électrocinétisme :

C'est ce que l'on appelle aussi électrofiltration (en anglais SP *Streaming Potential*). Le potentiel électrocinétique est le potentiel observé aux bornes d'un milieu poreux soumis à une circulation de fluides. Sa réciproque s'appelle l'électroosmose : c'est la création d'un déplacement du fluide dans un milieu poreux par application d'une différence de potentiel électrique.

En l'absence de conductivité de surface, le gradient de potentiel électrique aux bornes de l'échantillon est proportionnel au gradient de pression que l'on lui impose, comme le décrit l'équation (5.1), dite équation de Helmholtz-Smoluchowski :

$$\frac{\Delta V}{\Delta P} = \frac{\epsilon_r \epsilon_0 \zeta}{\eta \sigma_f} = C_{HS} \quad , \quad (5.1)$$

avec ΔV la différence de tension aux bornes de l'échantillon (*en V*), ΔP la différence de pression imposée aux bornes de l'échantillon (*en Pa*), ϵ_r la constante diélectrique du milieu poreux, ϵ_0 la permittivité électrique du vide ($8,854.10^{-12} F.m^{-1}$), ζ le potentiel zêta (*en V*), η la viscosité dynamique du fluide (*en Pa.s*), σ_f la conductivité électrique du fluide (*en S.m⁻¹*), et C_{HS} le coefficient de couplage électrocinétique (*en V.Pa⁻¹*).

Ces potentiels sont de l'ordre de quelques dizaines de millivolts. Il s'agit du phénomène générant la composante du potentiel spontané qui nous intéresse le plus dans ce travail, avec les potentiels électrochimiques.

La diffusion ionique :

Un potentiel de diffusion peut résulter de l'existence de gradients de concentration ionique. Ce potentiel est généralement de l'ordre de quelques dizaines de millivolts, e.g. (Maineult *et al.*, 2006). L'équation de Planck-Henderson adaptée à un milieu poreux relie le gradient de potentiel électrique au gradient de concentration ionique par l'équation (Revil, 1999 ; Maineult *et al.*, 2005).

Par exemple, pour un sel binaire, symétrique, non divalent, comme le $NaCl$:

$$\nabla V = \phi \frac{R T}{\mathcal{A} e} \frac{(\lambda_- - \lambda_+)}{(\lambda_- + \lambda_+)} \frac{\nabla C}{C} = \alpha^* \frac{\nabla C}{C} , \quad (5.2)$$

avec V le potentiel électrique de diffusion (en V), ϕ la porosité du milieu, R la constante molaire des gaz ($\simeq 8.314 \text{ J.mol}^{-1}.K^{-1}$), \mathcal{A} le nombre d'Avogadro ($\simeq 6,022.10^{23} \text{ mol}^{-1}$), e la charge élémentaire ($\simeq 1,602.10^{-19} \text{ C}$), T la température absolue (en K), λ_- et λ_+ respectivement les mobilités ioniques des anions et des cations, et C la concentration de sel (en mol.m^{-3}). α^* est le coefficient de couplage de potentiel de jonction (en V).

La sismoélectricité :

Ce phénomène génère des potentiels par effet électrocinétique, lors du déplacement des fluides par les ondes sismiques. Les anomalies ainsi créées sont faibles ($\simeq 1 \text{ mV}$) et peuvent être corrélées aux signaux sismiques afin d'être retirés du signal utile.

La bioélectricité :

Les phénomènes biologiques tels que la montée de sève dans les arbres ou la décomposition de la matière organique peuvent générer des potentiels dans le sol de l'ordre du millivolt. Il peut donc être nécessaire d'en tenir compte dans les régions boisées ou cultivées, même si la filtration de ce phénomène que l'on peut considérer comme un bruit de fond est relativement aisée (Telford *et al.*, 1976 ; Darnet, 2003).

Ainsi, le signal de PS est constitué de la contribution de nombreux potentiels et est donc particulièrement délicat à interpréter. L'étude des anomalies de potentiel électrocinétique, très faibles (quelques dizaines de millivolts), demande de prendre de nombreuses précautions expérimentales.

5.1.1.2 Le matériel utilisé pour la mesure de PS

Comme nous l'avons évoqué ci-dessus, le faible rapport signal sur bruit nécessaire à une mesure de PS implique de fortes contraintes sur les protocoles expérimentaux lors des campagnes de terrain. En effet, des phénomènes de polarisation au contact sol - électrode entraînent la nécessité d'employer des électrodes spéciales dites " impolarisables ", tandis que les faibles potentiels mesurés imposent l'usage de voltmètres à haute impédance d'entrée, e.g. (Darnet, 2003).

5.1.1.3 Electrodes impolarisables

L'utilisation d'électrodes métalliques " simples " est impossible pour les mesures de PS à cause du fort contraste de conductivité entre le métal et le sol qui induit des phénomènes de

polarisation d'électrodes. Ces parasites, de l'ordre de quelques millivolts, sont ici comparables au signal et donc inacceptables. En réponse à ce problème, des électrodes impolarisables permettant de s'affranchir de ces parasites ont été développées (Petiau et Dupis, 1980 ; Petiau, 2000).

Principe de fonctionnement des électrodes impolarisables :

Ces électrodes sont composées d'un métal (M) en équilibre chimique avec son sel (MX_x) en solution. Il peut s'agir par exemple d'électrodes $Pb/PbCl_2$ ou $Cu/CuSO_4$. La partie de l'électrode en contact avec le sol est un milieu poreux (céramique ou bois) permettant le couplage entre l'électrolyte et la terre, le contraste de conductivité entre ces deux milieux étant ainsi minimisé.

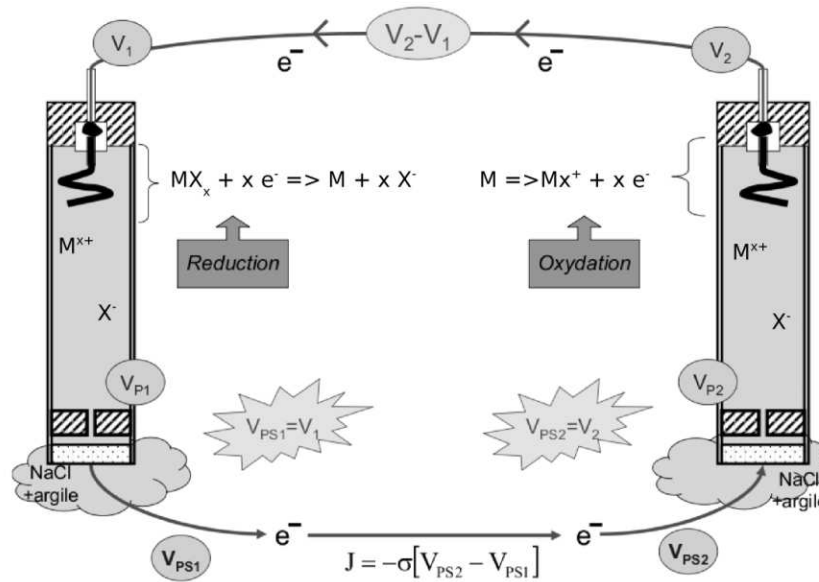


FIGURE 5.1 – Schéma de fonctionnement d'électrodes impolarisables. (D'après Darnet, 2003.)

La figure 5.1 schématise le principe de fonctionnements de ces électrodes. La mesure du PS consiste à mesurer le potentiel ($V_{PS2} - V_{PS1}$) afin de connaître le courant J parcourant le sol entre les deux électrodes. Cependant le courant mesuré aux bornes des électrodes est proportionnel à la différence de potentiels ($V_2 - V_1$). Il est donc important de s'assurer que les potentiels du sol (V_{PS_i}) et à la sortie des électrodes (V_i) sont égaux et que l'on a ainsi évité les phénomènes de polarisation.

Comme l'électrolyte est en équilibre chimique avec le fil de plomb, le potentiel est le même entre le sel et le fil métallique en haut de l'électrode. Il s'agit du potentiel de Nernst de la réaction d'oxydoréduction du plomb. De plus, l'électrolyte étant fortement chargé en ions ($NaCl$), sa conductivité électrique est élevée, et le potentiel électrique est ainsi constant au sein de l'électrode, d'où $V_i = V_P$. L'ajout d'une solution saturée en sel et en argile (bentonite) au pied de l'électrode peut permettre d'assurer un bon couplage entre l'électrolyte et le sol, garantissant ainsi la continuité du potentiel ($V_{p_i} = V_{ps_i}$). Cette étape n'est pas toujours nécessaire, notamment si le sol est humide.

Aussi, on augmente les chances d'avoir une bonne mesure, l'utilisation d'électrodes impolarisables garantissant l'égalité entre les différences de potentiel mesurées aux bornes des électrodes et celles existant dans le sol ($V_i = V_{PS_i}$).

5.1.1.4 Voltmètre à haute impédance d'entrée

Un voltmètre monté en parallèle aux bornes d'une résistance pour mesurer une tension perturbe la mesure si la résistance interne de l'appareil est trop faible. En effet, sur le circuit représenté sur la figure 5.2, le courant d'intensité $I_R = U/R$ doit être très supérieur au courant $I_V = U/R_V$ pour que la valeur donnée par l'appareil de mesure soit significative. Ainsi, la condition $R/R_V \ll 1$ doit être respectée.

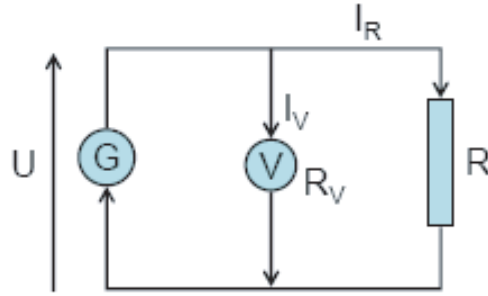


FIGURE 5.2 – *Circuit simple expliquant le principe d'un voltmètre à haute impédance d'entrée (Darnet, 2003).*

Or, en géophysique, la résistance du sol peut atteindre plusieurs dizaines de $k\Omega$, et la résistance interne d'un voltmètre standard est généralement comprise entre quelques dizaines de $k\Omega$ et quelques dizaines de $M\Omega$. Afin de s'assurer que la mesure de PS n'est pas perturbée par la résistance interne de l'instrument, il est conseillé d'utiliser un voltmètre à haute impédance d'entrée de résistance interne supérieure au $G\Omega$.

5.2 La Tomographie de Résistivité Électrique (ERT)

En 1912, Conrad Schlumberger fut le premier à penser à utiliser une mesure de résistivité électrique pour caractériser le sous-sol. L'objectif de la méthode est de déterminer la distribution de résistivité électrique dans le volume d'étude. Le principe consiste en l'injection de courants électriques dans le sol, et en la mesure des différences de potentiels générées dans le milieu d'étude, e.g. (Samouëlian *et al.*, 2005).

Pour un cylindre, on définit la résistivité ρ (en $Ohm.m$) par :

$$\rho = R \left(\frac{S}{L} \right) \quad , \quad (5.3)$$

avec R la résistance électrique (en Ohm), et S et L , respectivement la section (en m) et la longueur (en m) du cylindre.

La résistance électrique d'un corps obéit à la loi d'Ohm :

$$R = \frac{\Delta V}{I} \quad , \quad (5.4)$$

avec ΔV le potentiel électrique (en V), et I le courant (en A).

La conductivité électrique d'un milieu est l'inverse de sa résistivité et s'exprime en $S.m^{-1}$:

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \quad . \quad (5.5)$$

Les mesures de résistivité électrique nécessitent généralement au moins quatre électrodes. Deux électrodes d'injection de courant, notées A et B, et deux électrodes de mesure des différences de potentiel générées, notées M et N. Ces électrodes peuvent être disposées selon différentes géométries en fonction du milieu d'étude.

Sur le terrain, on réalise classiquement des panneaux électriques 2D en déplaçant les électrodes selon une ligne au sol, comme schématisé sur la figure 5.3. Les électrodes de mesure et d'injection sont, par exemple, maintenues à une distance respective fixe a , et le dispositif est déplacé le long de la ligne. On obtient alors un profil de résistivité. On multiplie alors la distance inter-électrodes par un facteur $n = 2$, et on réalise un autre profil le long de la même ligne et ainsi de suite. La profondeur auscultée augmente avec n , comme on peut le voir sur la figure 5.3. Ces profondeurs déduites de l'espacement inter-électrodes sont appelées pseudo-profondeurs, et la représentation 2D de la résistivité apparente en fonction de la position des électrodes et de la pseudo-profondeur est appelée pseudo-section.

De nombreuses géométries multi-électrodes sont utilisées à partir de ce principe de mesure à quatre électrodes. Ainsi, en inter-commutant automatiquement les injections de courant et les mesures de potentiel, on peut obtenir des panneaux de résistivité 2D ou des représentations 3D, e.g. (Samouëlian *et al.*, 2005). De plus, on peut améliorer la résolution verticale de la méthode en disposant des électrodes dans des forages, et non seulement en surface (Slater *et al.*, 2000). La mesure de résistivité électrique est devenue une méthode classique de caractérisation du sous-sol. Les applications industrielles et environnementales de cette méthode sont diverses, avec par exemple le suivi d'intrusions d'eau salée dans des aquifères (Nowroozi *et al.*, 1999) ou la caractérisation de sites pour le stockage de déchets (Yaramanci, 2000). La résolution de la mesure et la profondeur de pénétration peuvent varier grandement, avec une distance inter-électrodes et une taille d'électrodes adaptées (Depountis *et al.*, 2001). Au laboratoire, il est possible de miniaturiser la méthode de tomographie de résistivité électrique (ERT), en disposant directement des électrodes autour de l'échantillon (Olsen *et al.*, 1999).

Quand le milieu d'étude est homogène, la résistivité électrique est constante, indépendante de la distance inter-électrode. Mais quand le milieu est hétérogène (ce qui est généralement le cas

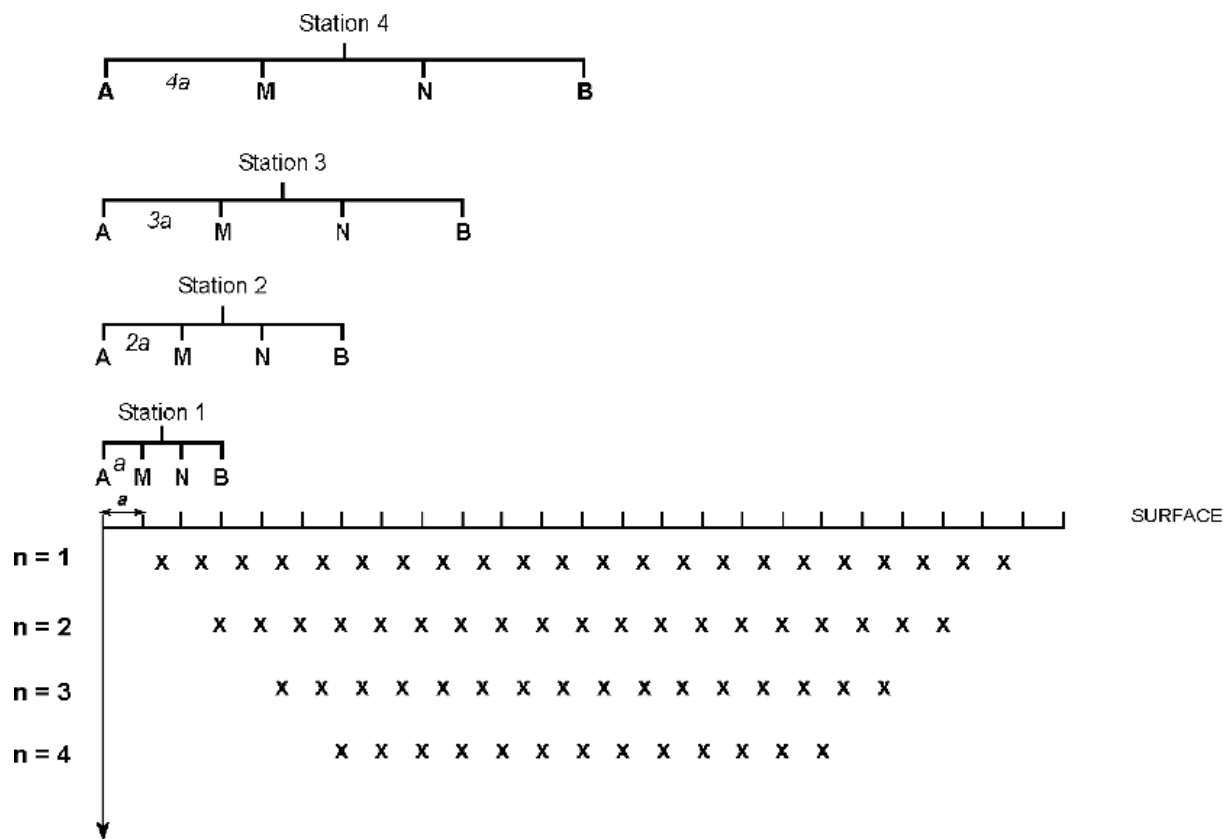


FIGURE 5.3 – Acquisition d'une pseudo-section de résistivité électrique 2D en géométrie d'acquisition de type Wenner. (Samouëlian et al., 2005)

dans la nature) la résistivité mesurée en surface ne correspond pas à la résistivité vraie. Cette « résistivité apparente » résulte de la contribution volumique de toute parcelle du milieu traversé par le courant émis en fonction de la distance à la source (Parasnis, 1997). Cette grandeur fournit une information qualitative sur les propriétés électriques du milieu étudié, mais ne fournit ni la forme réelle des anomalies, ni la profondeur réelle d'investigation, ni la vraie valeur de la résistivité électrique. La résistivité apparente dépend du protocole choisi pour l'injection de courant et la mesure de potentiel et de la sensibilité des électrodes. Pour calculer la vraie résistivité du milieu, il faut résoudre un problème inverse, afin de déterminer les résistivités vraies à partir des résistivités apparentes volumiques.

5.3 Le dispositif expérimental

Pour pouvoir réaliser des expériences de dissolution et précipitation de calcite en milieu granulaire, nous avons construit le dispositif présenté dans la figure 5.4, équipé de 64 électrodes en inox destinées à l'ERT et de 20 électrodes impolarisables miniatures $Cu/CuSO_4$ spécialement construites pour un suivi par Potentiel Spontané (PS) par la face supérieure du dispositif, à quelques centimètres sous la surface du sable.

L'inversion des résistivités intrinsèques dans la cuve à partir des mesures d'ERT dans la cuve entre deux injections (d'eau salée ou d'eau saturée de CO_2) fournit la répartition spatiale de la résistivité dans le dispositif. Ainsi, l'avancée du front d'eau salée ou de CO_2 pourra être suivie pendant les déplacements miscibles par suivi du PS et acquisitions d'ERT, et une modification importante de la porosité due à une dissolution, ou surtout à une précipitation, également.

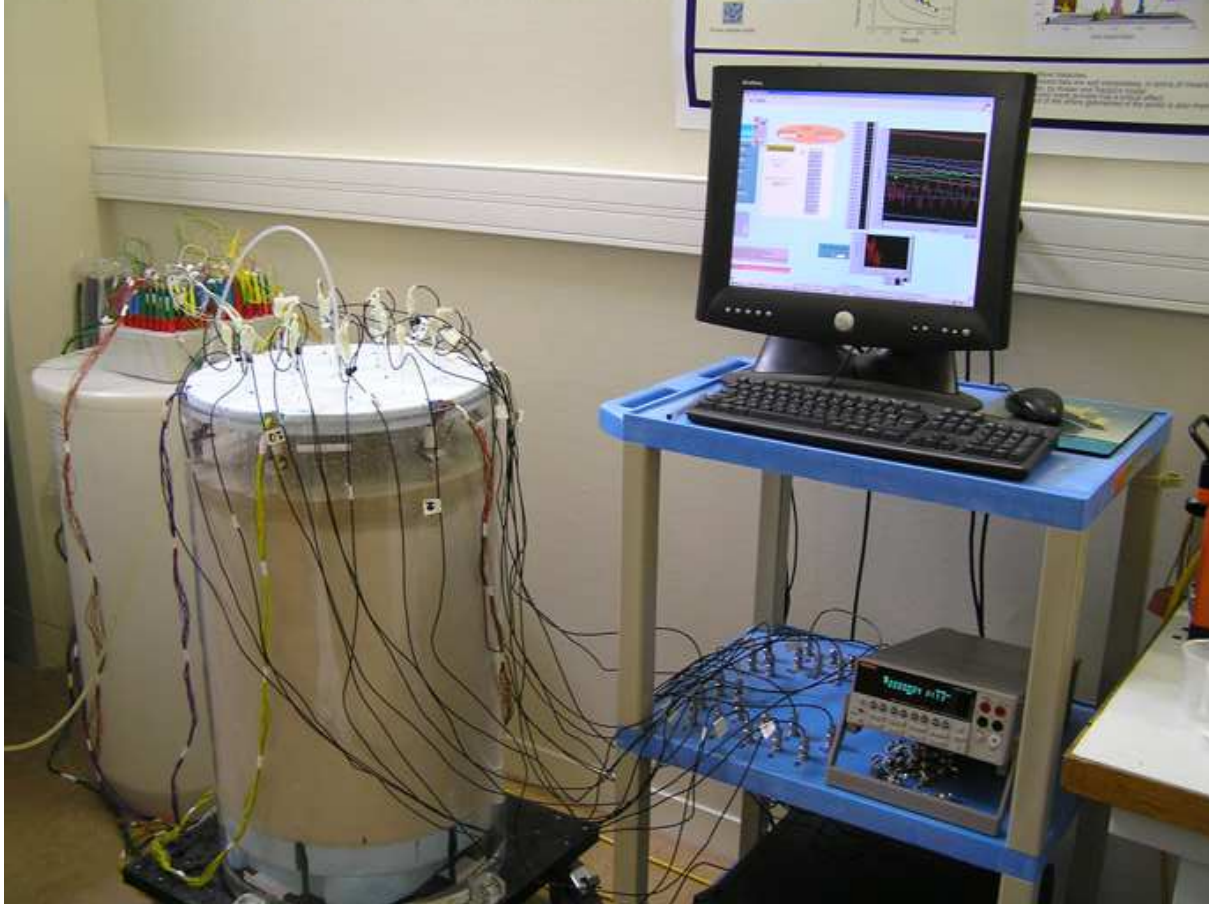


FIGURE 5.4 – *Modèle réduit de réservoir équipé pour le suivi géoélectrique d'injections en milieu granulaire. Ses dimensions sont de 47cm de diamètre intérieur et de 81cm de haut. Un système permet la circulation d'un fluide.*

5.3.1 Les mesures de PS

L'acquisition du signal PS en continu permet, d'une part, de suivre l'injection du fluide réactif, et, d'autre part, une fois la précipitation effectuée, de mettre en évidence les modifications des propriétés de la surface des grains sous l'effet de la précipitation de la calcite. En effet, le potentiel ζ des grains de quartz et de la calcite précipitée sont différents, entre -10 mV et -50 mV pour le quartz et de $+5\text{ mV}$ environ pour la calcite avec pour électrolyte une solution de $CaCl_2$ à $5.10^{-4}\text{ mol.l}^{-1}$ au pH 8 (Guichet, 2002 ; Thompson et Pownall, 1989). Ainsi, si une surface de quartz (sable de Fontainebleau) se recouvre de calcite, la mesure du PS en continu lors d'une circulation de fluide peut nous l'indiquer (Guichet, 2002), par comparaison de l'amplitude avant

et après réaction. L'évolution du potentiel ζ peut être déduit de celle du coefficient de couplage électrocinétique, coefficient de proportionnalité entre le gradient de pression et le gradient de potentiel électrique (cf. paragraphe 5.1.1.1).

Dans cette étude, les mesures de PS ont été effectuées avec des électrodes impolarisables $Cu/CuSO_4$ (Maineult, 2004), dont nous avons fabriqué plusieurs séries (cf. figure 5.5).



FIGURE 5.5 – Une électrode impolarisable $Cu/CuSO_4$ de type "Maineult".

5.3.1.1 Fabrication d'électrodes impolarisables

Compte tenu de l'échelle du modèle réduit, il faut utiliser des électrodes de taille réduite (pour minimiser les perturbations de l'écoulement autour des électrodes). Les électrodes commerciales utilisées pour la prospection de terrain étaient par conséquent inadaptées – par exemple les PMS9000 de SDEC-France, de type Petiau (Petiau et Dupis, 1980 ; Petiau, 2000). En effet, compte tenu de leur diamètre (3 cm), l'hypothèse de ponctualité de la mesure, à l'échelle de la cuve, n'aurait pas été respectée. D'autre part, des essais ont montré que ces électrodes relâchaient par diffusion une quantité de sel trop importante qui risquait de polluer le milieu d'étude (Maineult, 2004).

Notre choix s'est donc porté sur des électrodes miniatures (Maineult, 2004) constituées de tubes capillaires de pyrex de 5mm de diamètre extérieur et 1,25mm de diamètre intérieur. Une extrémité de ces tubes est évasée à chaud afin d'y imbriquer une céramique poreuse conique de 2mm de diamètre maximal comme on peut le voir sur la figure (5.6).

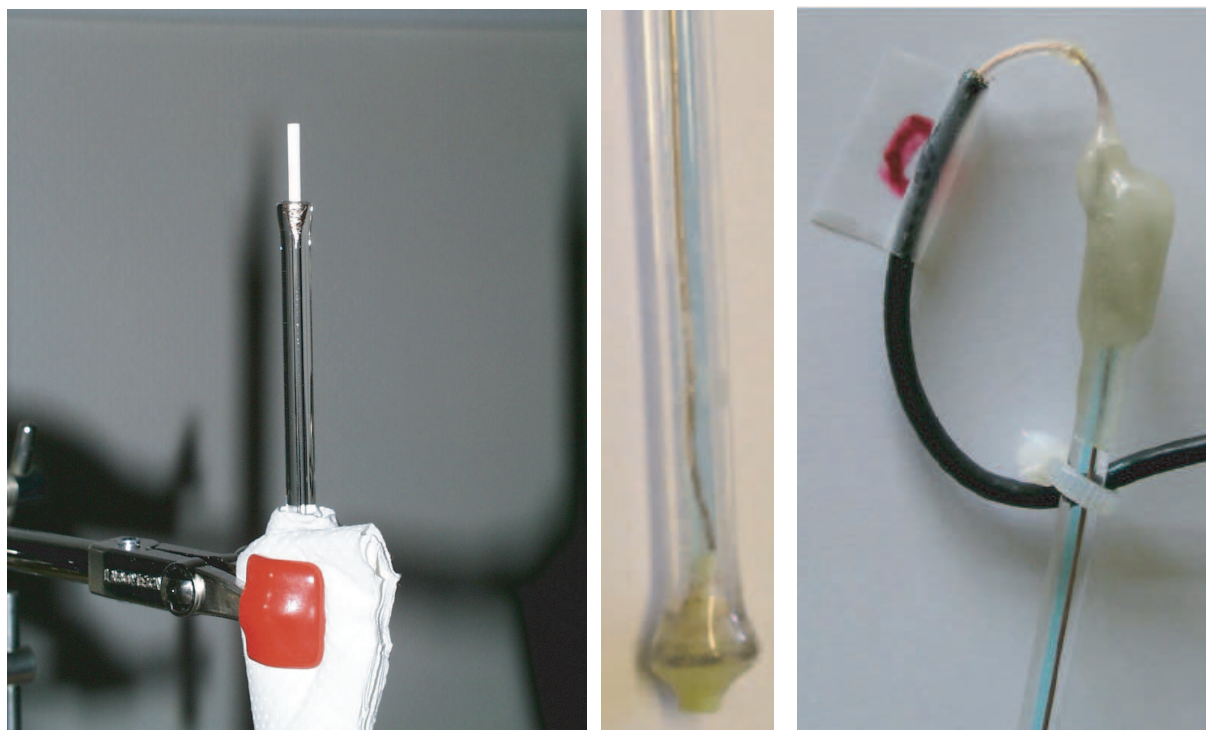


FIGURE 5.6 – *A gauche : électrode "Maineult" en cours de construction. La céramique poreuse est disposée dans la partie évasée du capillaire de pyrex. Au centre : céramique poreuse scellée avec de l'araldite au contact de laquelle vient le fil de cuivre baignant dans l'électrolyte. A droite : partie haute de l'électrode avec la connexion au câble coaxial et le bouchon de paraffine et d'araldite (d'après Maineult 2004).*

L'étape suivante est la fixation de cette céramique à l'araldite puis sa découpe pour la réduire à quelques millimètres. Ensuite, on monte une fiche BNC femelle sur un câble coaxial pour servir de connecteur, et on soude un fil de cuivre à l'autre extrémité de l'âme du coaxial. C'est ce fil qui viendra plonger dans le tube capillaire, baignant dans une solution sursaturée de sulfate de cuivre. La tresse externe du coaxial sert uniquement au blindage du fil interne. La fixation de l'extrémité haute de l'électrode est un point délicat. Elle doit en effet être rapide pour éviter que le sulfate ne s'échappe par la céramique poreuse et qu'une bulle d'air ne se forme. L'étanchéité se réalise avec de la paraffine de bougie recouverte d'araldite. On peut voir les deux extrémités d'une électrode sur les photos de la figure (5.6).

5.3.1.2 Acquisition du signal de PS

L'acquisition du signal PS se fait grâce à un voltmètre à haute impédance d'entrée. Il s'agit d'un Keithley 2701 équipé d'une carte d'acquisition à 40 canaux de modèle 7708. Les électrodes sont reliées à la carte par l'intermédiaire d'un panneau d'acquisition visible figure 5.4, sur l'étagère intermédiaire où repose le voltmètre. Ce panneau est constitué d'embases BNC de masse commune, qui permettent une connectique pratique et simple des électrodes impolarisables.

Les signaux sont ensuite enregistrés grâce à un ordinateur communiquant avec le Keithley par protocole TCP-IP, par le biais d'un programme Labview (Klein et Roche, 2005). Ce programme produit en sortie des fichiers texte comprenant le temps et la valeur de la différence de potentiel entre chaque électrode et une électrode de référence.

5.3.2 Les électrodes de résistivité électrique



FIGURE 5.7 – *Vue de la cuve avec les six tiges supportant les électrodes de résistivité électrique.*

Pour pouvoir réaliser la tomographie de résistivité électrique, il a fallu équiper la cuve d'électrodes. Nous avons choisi un nombre de soixante-douze électrodes réparties en six lignes de douze électrodes chacune (cf. figure 5.7). Initialement, nous avons réalisé ces électrodes avec des colliers de serrage en inox fixés le long d'une tige en PVC et éloignés entre eux de cinq cm (cf. figure 5.8). Ces électrodes ont été câblées et reliées à des fiches bananes permettant la connexion au dispositif d'acquisition électrique.

Les panneaux de résistivité électrique obtenus par cette méthode ne se sont pas avérés satisfaisants. En effet, la reproductibilité et la résolution des résultats étaient toutes deux en deçà

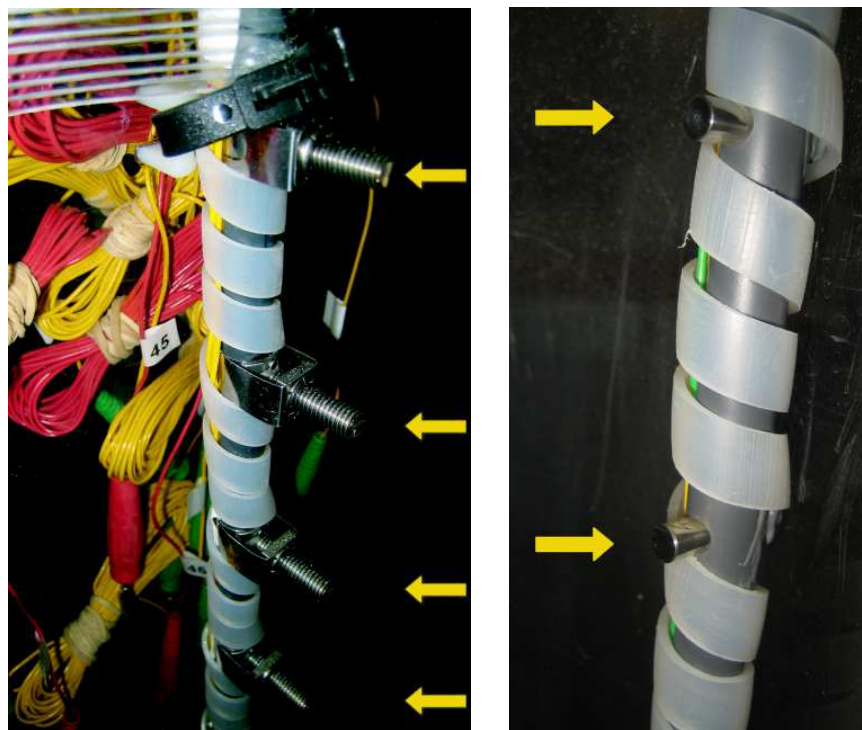


FIGURE 5.8 – Vue d’une tige équipée d’électrodes de tomographie en inox. Modèle initial à gauche et modèle amélioré à droite.

de nos espérances. De plus, des problèmes de corrosion des électrodes sont apparus, risquant de modifier la mesure de résistivité, de perturber l’équilibre chimique du milieu, et de créer des artefacts redox lors d’une mesure de potentiel spontané.

Aussi avons-nous décidé d’équiper le dispositif avec de nouvelles électrodes en inox 316L. Nous avons donc percé les tiges en PVC servant de support aux électrodes, et usiné 66 électrodes cylindriques en inox de 5mm de section et 16mm de hauteur (figure 5.8 à droite).

La partie dépassant du PVC et servant donc réellement d’électrode est beaucoup plus petite que dans le modèle précédent ($L = 6 \text{ mm}$, $\Phi = 5 \text{ mm}$) et respecte ainsi la ponctualité des électrodes moyennant un espacement inchangé de 5 cm entre deux électrodes (Pant, 2007). La fixation des câbles autour des électrodes et de ces dernières dans les perçages des tiges a été faite grâce à une résine époxyde, englobant la partie arrière de l’électrode entre la tige PVC et la paroi de la cuve, et permettant ainsi l’isolation électrique. De plus, le polissage fin de l’inox permet de se protéger de la corrosion, qui dépend de l’état de surface du métal. Les vis de serrage utilisées pour la première génération d’électrodes étaient très insatisfaisantes au vu de ces critères.

5.3.3 Acquisition des données de l’ERT

La tomographie électrique a été réalisée en utilisant un résistivimètre de terrain ABEM TERRAMETER SAS 1000 associé à un multiplexeur ES-1064. Cet appareil permet d’automatiser

les mesures de résistivité apparente en chargeant des protocoles d'injection du courant et de mesure de potentiel. On peut ainsi réaliser toutes les géométries désirées d'injection de courant et de mesures de résistivité apparente entre les différentes électrodes.

Cet appareil autonome est alimenté par une batterie 12V. En fin d'acquisition, les données sont récupérées sur un PC et tracées et/ou inversées grâce au logiciel RES2DINV par exemple (Loke et Barker, 1996). Ce travail a été réalisé en collaboration avec Marc Pessel de l'université Paris Sud (Pessel, 2001).

5.3.4 Protocole de mesures automatisées

Afin de couvrir au mieux le volume de la cuve et d'avoir la meilleure résolution possible, nous avons élaboré avec Marc Pessel un protocole déterminant l'ordre et la géométrie des injections de courant et des mesures de potentiel. Ce protocole est défini pour la géométrie de notre dispositif, soit 66 électrodes disposées le long de six tiges, dont 64 sont « actives ». Notre choix s'est arrêté sur un protocole dipôle-dipôle pour la mesure de la résistivité dans la cuve, ce genre de dispositif permettant une densité importante de points de mesure et une bonne résolution dans les conditions d'acquisition de cette expérience (Samouëlian *et al.*, 2005), et étant particulièrement adapté aux contraintes géométriques d'une tomographie 3D. Ce protocole permettant l'acquisition des 916 différences de potentiel est présenté en détail, mesure par mesure, en annexe (cf. annexe A). Une acquisition complète de tomographie de résistivité électrique selon ce protocole dure environ 6 h.

5.3.5 Inversion des données de résistivité électrique

Les paragraphes suivants présentent les résultats des tests effectués avec le dispositif métrique de suivi géoélectrique d'injections en milieu granulaire, ainsi que les développements qui ont été nécessaires pour exploiter les données acquises. L'ERT exige en particulier la résolution d'un problème inverse pour imager le système étudié. Deux méthodes d'inversion différentes ont été testées au cours de cette étude. Ces expériences ont permis de mettre en évidence des faiblesses parmi le montage et les programmes informatiques, et elles ont ainsi permis de faire évoluer le dispositif vers sa version finale, qui est maintenant opérationnelle.

5.3.5.1 Principe de l'inversion des données

Le problème direct consiste à obtenir le champ de potentiel électrique à partir de la distribution de la conductivité électrique dans la cuve. Le problème inverse, lui, définit la transformation inverse, soit l'obtention de la distribution de conductivité (ou de résistivité) électrique en tout point de la cuve à partir du champ de potentiel électrique (Pessel, 2001). On définit ainsi deux

espaces : l'espace des données, contenant la résistivité apparente, et l'espace des solutions (ou modèles) constitué des distributions de conductivité.

La mesure de la résistivité apparente volumique ne fournit pas suffisamment d'information pour déterminer un modèle unique convenant au problème posé, soit la détermination de la distribution synthétique de résistivité électrique du milieu. En effet, la nature même du problème de potentiel impose la non unicité des solutions permettant d'obtenir le champ observé, et le fait que les données puissent être bruitées est à considérer également dans la modélisation directe (Pessel, 2001). C'est pourquoi il faut procéder en définissant un premier modèle *a priori*, et utiliser un algorithme permettant de « comparer » les données à ce modèle, en optimisant les valeurs des paramètres du modèle direct, et définissant ainsi un nouveau modèle plus proche de la solution cherchée. Un algorithme d'inversion bien défini doit ainsi permettre de converger petit à petit vers un modèle proposant des résultats proches des données observées, et physiquement réaliste.

Lors des premiers tests réalisés avec cette cuve, nous avons inversé les données en panneaux 2D, coupant la cuve, avec RES2DINV, en utilisant un protocole adaptée pour les dipôles sources et récepteurs. L'expérience de déplacement miscible présentait un contraste de résistivité permettant de visualiser correctement l'avancée du front, mais la technique d'inversion ne s'est pas révélée satisfaisante lors de tests ultérieurs, la géométrie 3D de l'expérience exigeant une modélisation et une inversion adaptées. C'est pourquoi nous avons décidé d'utiliser un code d'inversion 3D, pouvant être modifié pour la géométrie du dispositif, et dont les sources, fournies par les auteurs, permettent de contrôler toutes les étapes de calcul. Ce code est le package Matlab© RESINVM3D (Pidlisecky *et al.*, 2007).

5.3.5.2 Les codes d'inversion

RES2DINV est un programme d'inversion de panneaux de résistivité électrique à deux dimensions (Loke et Barker, 1996). Les protocoles définissant l'injection de courant et la mesure des potentiels peuvent être adaptés à des protocoles divers de panneaux de résistivité à 2D. Afin de rester le plus proche possible de l'utilisation classique de ce logiciel, nous avons décidé de réaliser trois coupes en 2D de la cuve cylindrique lors de chaque acquisition, afin d'avoir une première approche de l'évolution du milieu lors d'une expérience. Ce programme permet de réaliser un modèle inversé 2D de la distribution de résistivité de la subsurface, par moindres carrés. Différentes variations de cette méthode d'optimisation sont proposées, ainsi que des possibilités de filtrage et de lissage des données de résistivité apparente.

RESINVM3D est un package Matlab© d'inversion de données de résistivité électrique. Il est *open source*, et permet de traiter des problèmes de géométrie différente, dont l'un s'approchant de la géométrie de la cuve que nous avons développée. Je vais, dans ces paragraphes, expliquer les grandes lignes de son fonctionnement et les modifications qu'il m'a fallu lui apporter pour l'adapter aux expériences qui nous intéressent.

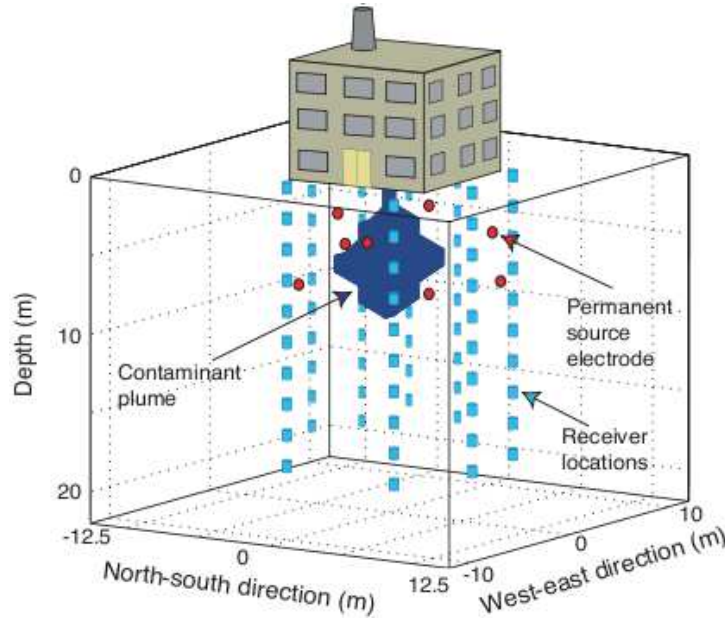


FIGURE 5.9 – Schéma de la situation prise pour illustration d'application de RESINVM3D par les auteurs. (Pidlisecky *et al.*, 2007)

Un des deux exemples de démonstration fourni par les auteurs (Pidlisecky *et al.*, 2007), et dont le jeu de données est disponible sur le site de la SEG, représente une expérience de tomographie 3D en configuration pôle-dipôle, avec des électrodes de subsurface. La configuration pôle-dipôle permet d'effectuer des mesures avec des électrodes de courant fixes et des électrodes potentielles montées sur des pénétrromètres à cônes, placés dans des forages autour d'une usine suspectée de fuite de contaminants. La présence d'électrodes en surface serait impossible du fait de la présence de l'usine (cf. figure 5.9), d'où le choix de cette géométrie.

Les combinaisons entre les électrodes d'injection de courant et de mesure de potentiel permettent 4704 mesures de potentiel, et l'espace est modélisé par un maillage parallélépipédique de 13200 cellules.

Le problème direct est résolu par un algorithme de gradient biconjugué, discrétisé en volumes finis. De plus, le résultat du problème direct est comparé à chaque pas à l'expression analytique d'un champ de potentiel dans un demi espace homogène. Cette comparaison permet de calculer un facteur de correction visant à réduire les erreurs du problème direct. Ensuite, le problème inverse est calculé grâce à un algorithme de Gauss-Newton dit « inexact », la mise à jour du modèle se faisant grâce à un gradient préconditionné conjugué. La régularisation est de type « Tikhonov du premier ordre ». La figure 5.10 représente le résultat de l'inversion de démonstration de ce programme pour le cas de la fuite de contaminant évoqué ci-dessus.

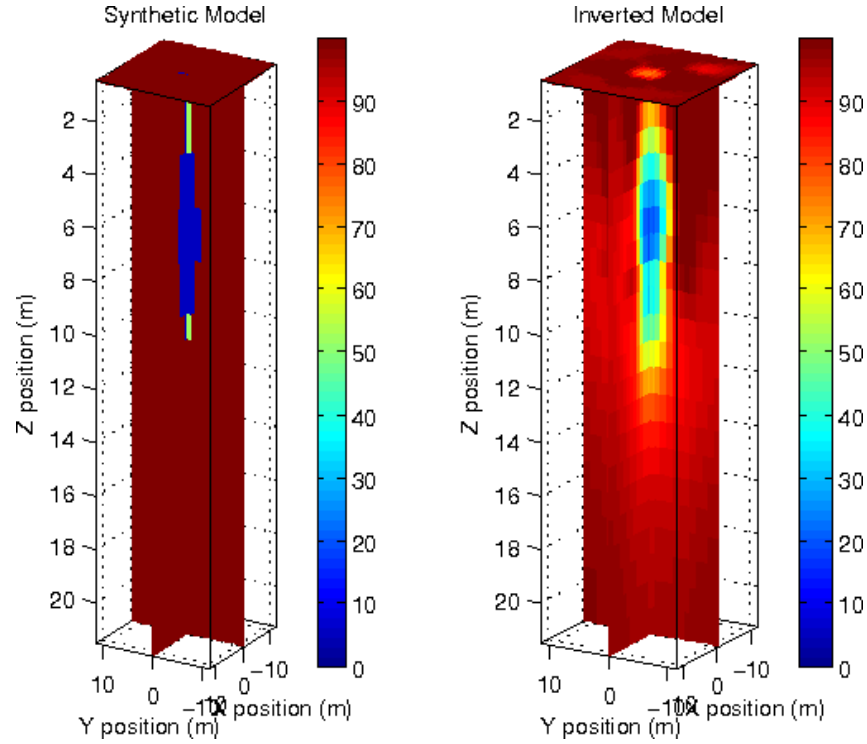


FIGURE 5.10 – Résultat de démonstration d'inversion avec RESINV3D (Pidlisecky et al., 2007).

5.3.5.3 Adaptation de RESINV3D

Pour utiliser RESINV3D, il a tout d'abord fallu adapter le maillage à la cuve. Pour ce faire, nous avons déterminé un parallélépipède rectangle circonscrit au cylindre. Ses dimensions sont donc de $50 \times 50 \times 70 \text{ cm}^3$, soit 11200 cellules cubiques de $2,5 \text{ cm}$ de côté, dimension égale à la moitié de la plus courte distance inter-électrodes.

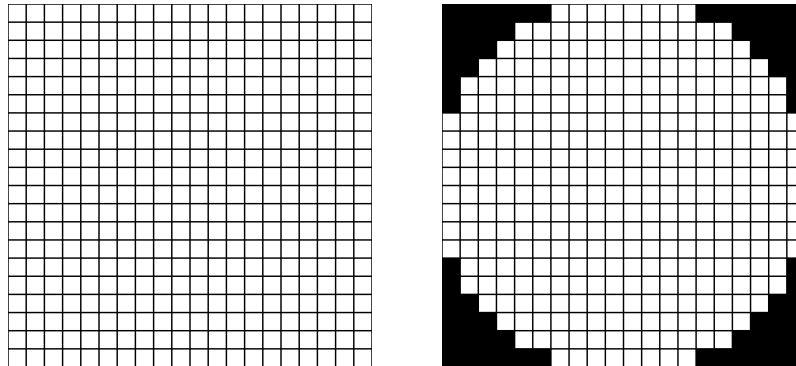


FIGURE 5.11 – Section du maillage à différentes étapes de son élaboration.

On peut observer dans la figure 5.11 la section du maillage suivant le plan perpendiculaire à l'axe z , soit un carré de 400 cellules. Le deuxième schéma de la figure représente les voxels actifs (en blanc), afin de tenir compte au premier ordre de la forme cylindrique de la cuve utilisée.

L'exemple de démonstration, présenté partie 5.3.5.2, utilise une géométrie pôle-dipôle pour l'injection de courant et la mesure de potentiels. Ici, comme présenté partie 5.3.4, les injections et mesures successives se font d'après un protocole dipôle-dipôle.

Nous avons donc dû modifier en conséquence le format et la lecture des adresses de sources et récepteurs dans les différents sous-programmes, et créer le fichier de sources adapté.

5.4 Les expériences

5.4.1 Évolution du PS lors d'une injection d'eau salée

L'injection d'eau salée (NaCl) dans un sable de Fontainebleau initialement saturé d'eau douce nous permet d'étudier l'avancée du front salé dans le sable. Le suivi du Potentiel Spontané en surface pendant les injections, et surtout les mesures de tomographie de résistivité électrique entre ces phases d'injection doit permettre une caractérisation du comportement hydraulique du sable initial (homogénéité, isotropie...).

Nous présentons ici les résultats préliminaires du premier déplacement miscible effectué dans du sable, avec suivi par méthodes géoélectriques. Il s'agit de l'injection d'une eau salée ($\sigma_{inj} = 1 \text{ S.m}^{-1}$), au milieu de la surface supérieure de la cuve, dans du sable initialement saturé d'eau distillée ($\sigma_{init} = 2.10^{-4} \text{ S.m}^{-1}$), en circuit ouvert à un débit de 120 ml.min . Le sable utilisé est un sable de Fontainebleau tamisé de porosité 0,456 et de granulométrie comprise entre $125 \mu\text{m}$ et $200 \mu\text{m}$. La caractérisation de ce sable par diffraction X donne une composition de 95% de quartz et de 5% de feldspaths.



FIGURE 5.12 – *Disposition des électrodes de PS en surface de la cuve.*

Lors de cette expérience, la cuve était équipée de 20 électrodes impolarisables pour la mesure

du PS (cf. figure 5.12). L'électrode de référence est enfoncée à mi-profondeur dans la cuve, et les 19 électrodes de mesure sont disposées en surface (cf. figure 5.13).

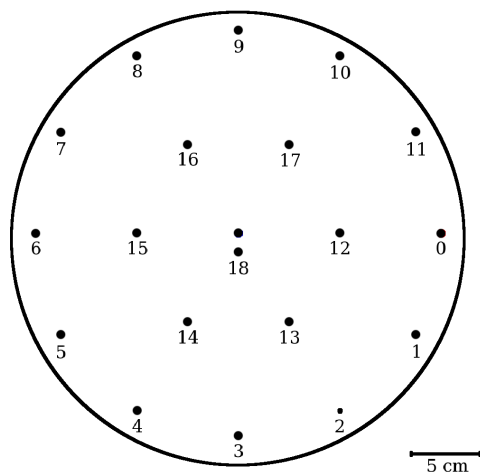


FIGURE 5.13 – Schéma de la disposition des électrodes de PS en surface de la cuve. Entre l'électrode 0 et l'électrode 1, l'électrode de référence est enfoncée 20cm en dessous de la surface du sable. Au dessus de l'électrode 18, un point marque la position de la canne d'injection de solution au centre de la cuve.

La figure 5.14 représente les 19 différences de potentiel mesurées entre la référence et les électrodes de mesure.

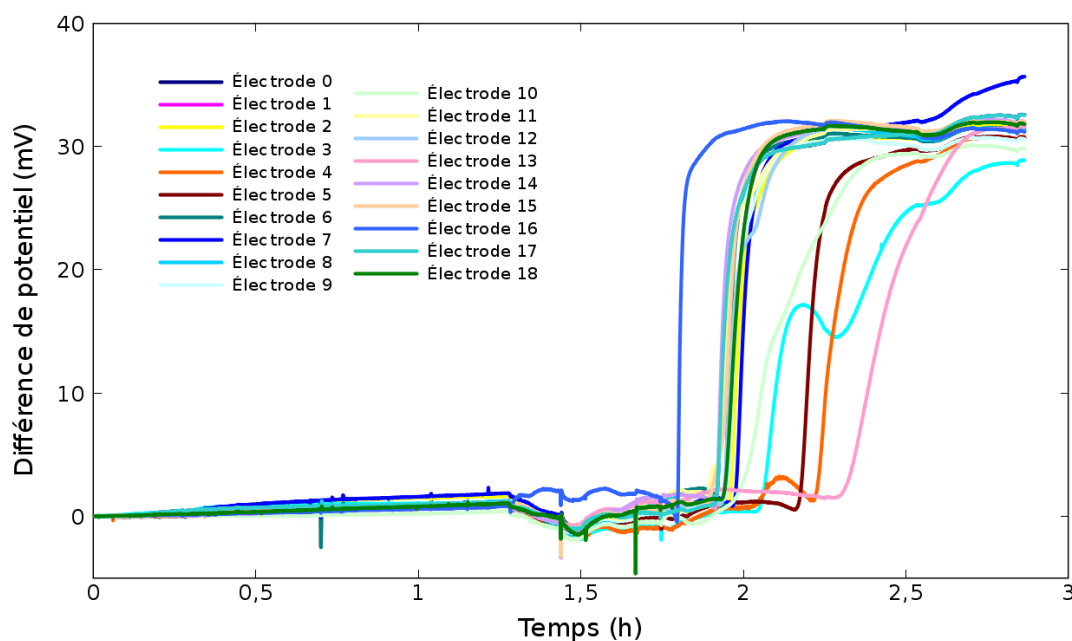


FIGURE 5.14 – Différence de potentiel entre les électrodes de PS de surface et l'électrode de référence enfouie à mi-profondeur de la cuve en fonction du temps.

On observe sur cette figure les signaux de différence de potentiel (en mV) entre chaque électrode et la référence. Ces signaux évoluent en fonction du temps, le temps 0 correspondant au début de l'acquisition de PS. On observe tout d'abord un palier, où les 19 électrodes de surface dérivent peu pendant 1,3 h , la cuve étant initialement saturée en eau distillée en équilibre avec le quartz, sans circulation.

Après ce délai, les électrodes varient faiblement de concert (à une exception près). C'est le moment où la vanne de fond de cuve a été ouverte pour créer la percolation. Des variations légères, de l'ordre de quelques milliVolts surviennent alors causées par le réglage du débit désiré. Enfin, aux alentours de 1,6 h , où on peut observer un pic de bruit sur l'électrode 18, l'injection de solution salée débute. L'électrode 16 est la première à montrer une variation notable, avec une faible baisse progressive durant une dizaine de minutes, puis une augmentation brutale de 30 milliVolts en quelques secondes. Le signal se stabilise ensuite à cette valeur. Avec des temps de déclenchement différents, on observe un comportement identique sur chaque électrode de surface, à quelques fluctuations près que nous ne chercherons pas à expliquer en détail ici.

En rapportant les numéros d'électrodes à leur position sur la cuve (cf. figure 5.13), on peut remarquer que cette augmentation de PS survient à des temps différents selon la position de l'électrode dans la cuve, l'injection d'eau salée intervenant au centre de la cuve, et l'extension du panache nécessitant un certain temps pour atteindre la périphérie du modèle réduit.

En effet, lors de l'injection de solution salée, lorsque le front atteint l'électrode de mesure, le gradient relatif de concentration entre cette électrode et la référence augmente, engendrant une différence de potentiel de diffusion.

On peut remarquer également figure 5.15 le tracé d'un détail d'un signal de PS entre une électrode de surface et la référence. On peut ainsi observer le bruit haute fréquence du signal, dont le niveau est très faible, puisque nous avons ici un bruit d'une amplitude moyenne de $50\mu V$, soit un rapport bruit sur signal inférieur à 0,2%.

Lors de cette injection, les phénomènes principaux engendrant la différence de potentiel entre les électrodes enfoncées peu profondément sous la surface de la cuve et l'électrode de référence enfoncée 20 cm en dessous devrait être l'électrodifusion et l'électrocínétisme. La diffusion devrait même être le phénomène prépondérant au vu du faible débit de l'écoulement, ce dernier intervenant dans une direction perpendiculaire au plan des électrodes de mesure. En imaginant le couplage de jonction constant, on peut déterminer la variation du potentiel de diffusion entre une électrode et l'électrode de référence en fonction du contraste relatif de concentration en sel à partir de l'équation 5.2 (Maineult, 2004) :

$$\Delta V_{diff} = V_{elec} - V_{ref} = \alpha^* (\ln(C_{elec}) - \ln(C_{ref})) \quad , \quad (5.6)$$

avec C_{elec} la concentration en $NaCl$ au niveau de l'électrode de mesure, et C_{ref} la concentration en $NaCl$ au niveau de l'électrode de référence.

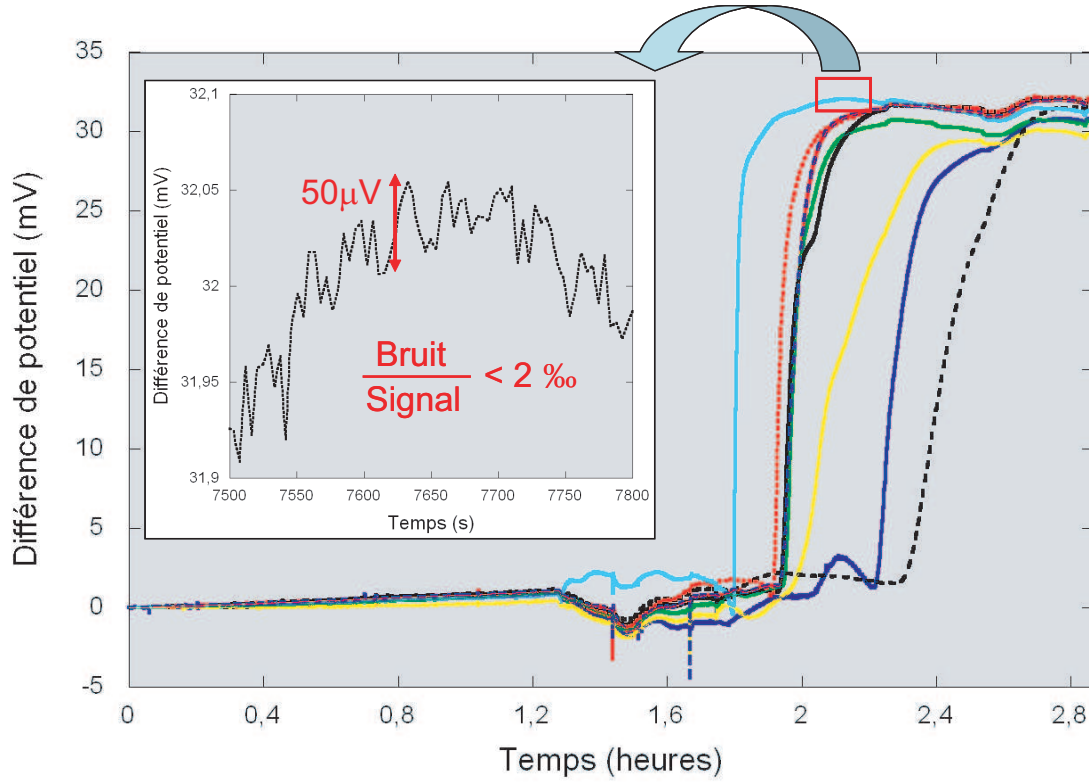


FIGURE 5.15 – Différence de potentiel entre quelques électrodes de PS de surface et l'électrode de référence enfouie à mi-cuve en fonction du temps. Détail d'une courbe illustrant le niveau de bruit du signal de PS.

D'après l'équation 5.2, on a :

$$\alpha^* = \phi \frac{R T}{\mathcal{A} e} \frac{(\lambda_- - \lambda_+)}{(\lambda_- + \lambda_+)} . \quad (5.7)$$

Or, le terme de mobilités ioniques pour $NaCl$ est $\frac{(\lambda_- - \lambda_+)}{(\lambda_- + \lambda_+)} = 0,21$ (Maineult *et al.*, 2005). Aussi, avec $\phi = 0,456$ et $T = 293 K$, on obtient $\alpha^* \simeq 0,0024 V$.

L'électrode de référence étant enfoncée 20 cm sous la surface du sable, la conductivité électrique du fluide à ce niveau est de $2 \cdot 10^{-4} S.m^{-1}$, soit la conductivité initiale de l'eau dans la cuve. Lors de l'injection d'eau salée au centre de la face supérieure de la cuve, la valeur maximale de la conductivité électrique au niveau des électrodes de mesure est la valeur de la conductivité du fluide injecté, soit $1 S.m^{-1}$. En considérant l'évolution de la conductivité d'un fluide salé linéaire en fonction de sa concentration en $NaCl$, l'équation (5.6) peut s'écrire :

$$\Delta V_{diff} = V_{elec} - V_{ref} = \alpha^* (\ln(\sigma_{elec}) - \ln(\sigma_{ref})) \Rightarrow V_{diff} \simeq +21 mV . \quad (5.8)$$

La différence de potentiel moyenne à la référence observée par les 19 électrodes impolarisables de $+30\text{ mV}$ lors de l'injection d'eau salée est ainsi en partie expliquée par la contribution de la valeur de $+21\text{ mV}$ du potentiel de diffusion. La différence entre ces deux valeurs pourrait être la contribution du potentiel électrocinétique, dont le signe serait le bon du fait du potentiel ζ négatif du quartz, mais dont on ne peut estimer la valeur, ne connaissant pas la perméabilité du sable de Fontainebleau utilisé.

En interpolant les valeurs de PS entre les différentes électrodes de surface, on peut représenter des cartes du potentiel spontané en surface de la cuve à des temps différents.

Pour ce faire, nous avons utilisé une méthode d'interpolation spatiale géostatistique, le krigage (Krige, 1951 ; Matheron, 1963), avec le logiciel 3DFIELD. Ici, cependant, sur les cartes de la figure 5.16, les conditions aux limites en bord de cuve n'ont pas été définies, c'est pourquoi ces courbes nous donnent seulement une idée de la répartition du potentiel spontané en surface de la cuve à chaque temps. On observe l'arrivée du front détecté d'abord autour de l'électrode 16 (selon la numérotation des figures 5.14 et 5.13, les cartes de la figure 5.16 ayant un décalage dans les numérotations), puis se propageant jusqu'à atteindre les électrodes les plus extérieures.

Ceci vérifie la possibilité de réaliser un suivi spatio-temporel d'avancée d'un fluide salin en milieu poreux saturé dans ce dispositif grâce à la mesure du potentiel spontané, même à une petite échelle spatiale grâce aux électrodes impolarisables miniatures et à l'acquisition automatisée (Maineult, 2004 ; Maineult *et al.*, 2005 ; Maineult *et al.*, 2006).

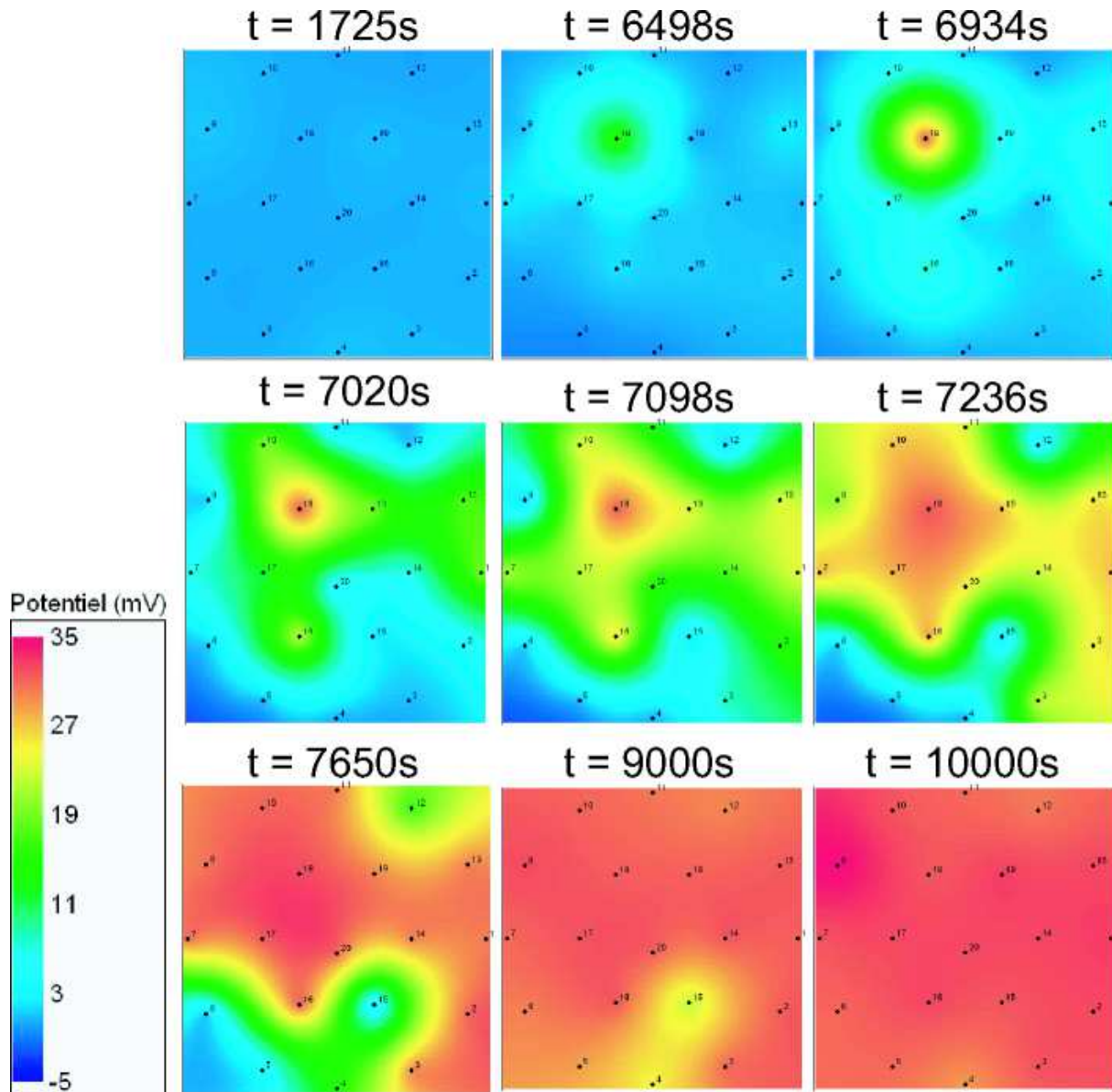


FIGURE 5.16 – *Interpolation spatiale du PS en surface de la cuve lors d’une injection d’eau salée dans un sable de Fontainebleau saturé d’eau distillée.*

5.4.2 Inversion de l’ERT entre les différentes phases d’injection d’eau salée

Après l’injection décrite dans le paragraphe 5.4.1, nous avons procédé à un arrêt de l’injection pour procéder à une acquisition d’ERT, en supposant la diffusion négligeable pendant cette période, puis nous avons repris l’injection d’eau salée, effectuant ainsi trois paliers d’injection entrecoupés de tomographies de résistivité électrique, afin de visualiser la répartition de l’eau salée dans la cuve et l’évolution de la distribution de conductivité.

5.4.2.1 Imagerie du front d'eau salée par inversion des données à l'aide du code RES2DINV

Avant de réaliser l'inversion des données en géométrie 3D, nous avons réalisé des coupes 2D de résistivité avec le code d'inversion RES2DINV. Il s'agit en fait d'une tomographie approximative à deux dimensions, entre deux tiges diamétralement opposées, entre les injections successives d'eau salée.

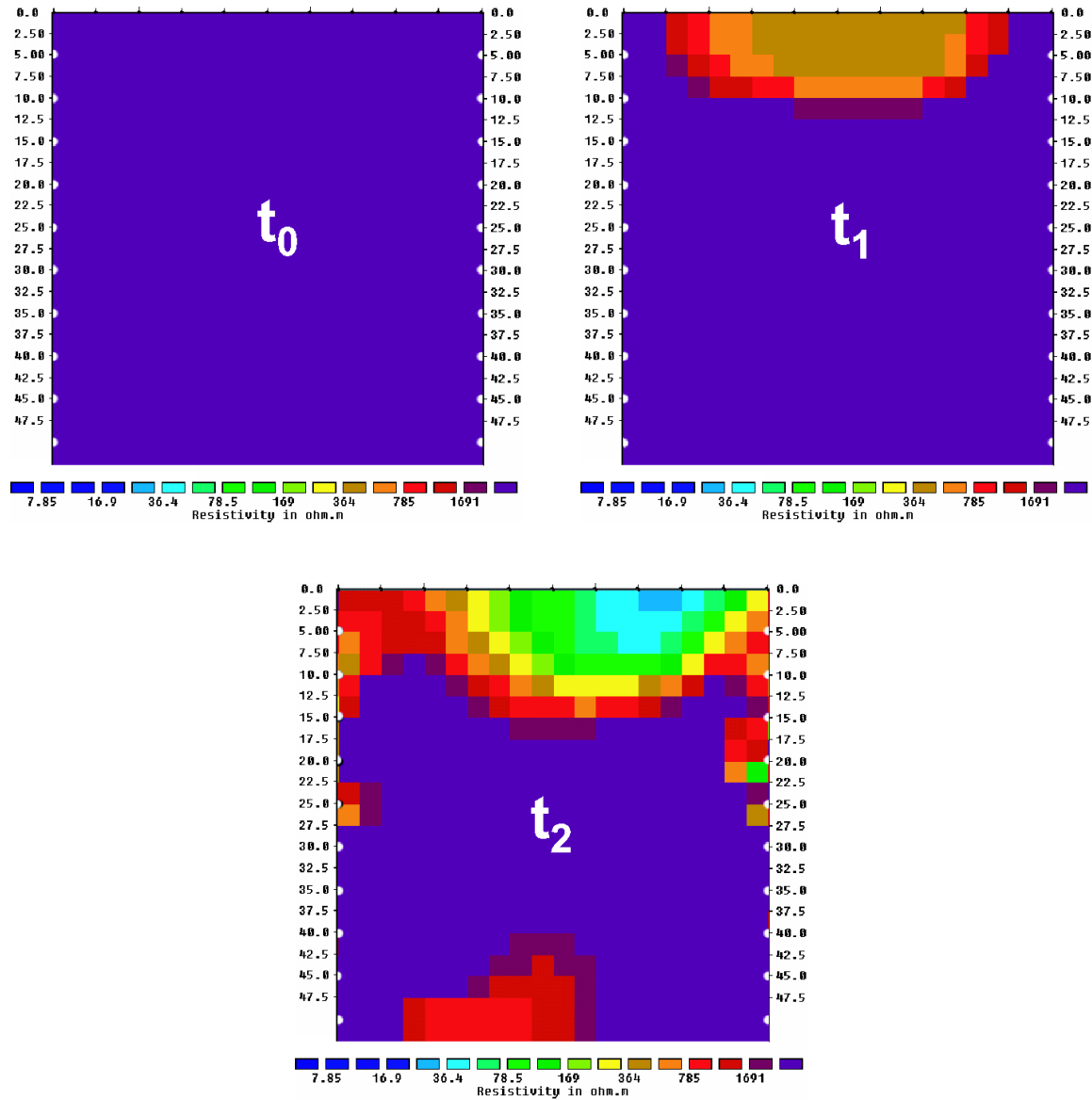


FIGURE 5.17 – Résistivité électrique inversée en coupe dans la cuve de sable de Fontainebleau saturé d'eau distillée, lors d'une injection d'eau salée. Les tomographies sont faites à trois temps différents : avant l'injection, puis entre deux injections. Les points blancs représentent les électrodes en inox de deux tiges diamétralement opposées.

La figure 5.17 présente l'évolution d'une de ces coupes pour les temps successifs t_0 , t_1 et t_2 , correspondant respectivement au temps initial, puis au temps après l'injection. On observe

l'avancée du front d'eau salée injecté en haut de la cuve dans un milieu initialement fortement résistif. Il faut noter que les valeurs situées à l'extérieur des tiges sont aberrantes, les conditions aux limites n'ayant, ici non plus, pas encore été finalisées.

5.4.2.2 Inversion des données avec le code RESINV3D

Pour tester cette méthode d'inversion 3D, nous avons décidé de commencer par un cas simple, à savoir l'imagerie d'un cylindre de PVC de 30 *cm* de hauteur et 10 *cm* de diamètre posé verticalement en fond de cuve, en son centre, immergé dans une eau légèrement salée.

a) Modèle initial de résistivité uniforme :

Lors d'une première série de tests, nous avons inversé les données ainsi obtenues à partir d'un modèle de résistivité uniforme pour le milieu initial. La résistivité adoptée est celle de l'eau utilisée dans la cuve, soit 20 $\Omega.m$.

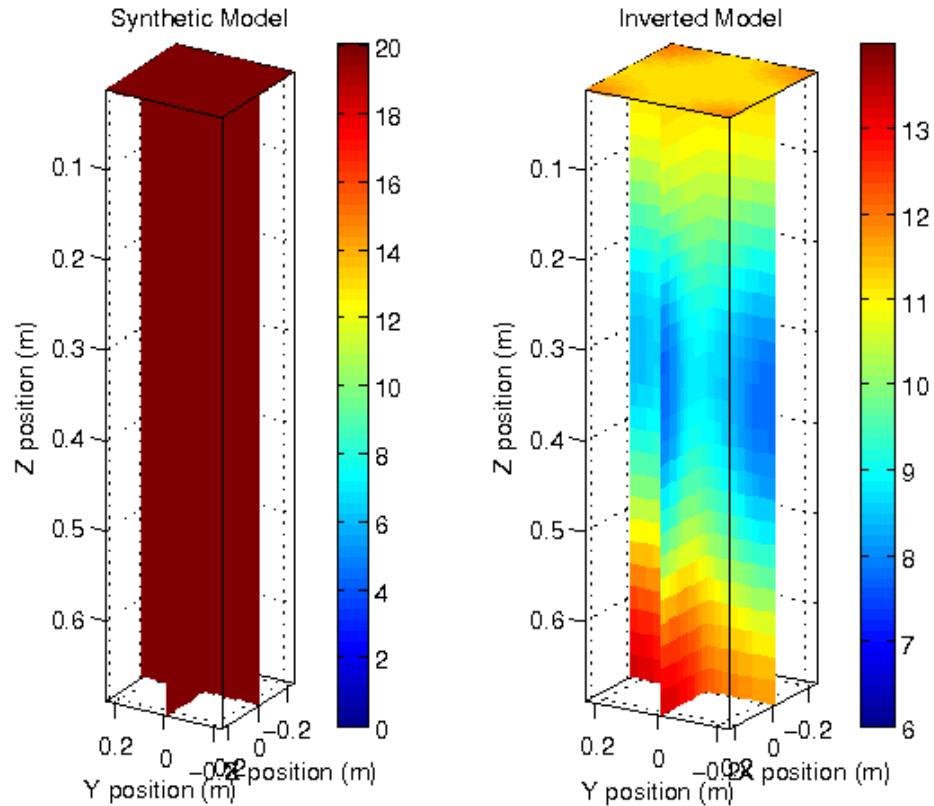


FIGURE 5.18 – Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINV3D (à droite) à partir d'un modèle initial uniforme (à gauche). Les échelles de couleur représentent la résistivité électrique, en $\Omega.m$.

La figure 5.18 présente le résultat obtenu par l'inversion de nos données expérimentales en utilisant RESINV3D avec une information à priori quasi nulle, soit un modèle uniforme de résistivité. La distribution de résistivité obtenue ainsi ne peut absolument pas correspondre avec

le montage expérimental.

Nous avons donc essayé de complexifier légèrement le modèle à priori, en introduisant une valeur de forte résistivité dans la partie inférieure de la cuve, correspondant au cylindre de PVC.

b) Cylindre de résistivité électrique $1.10^{13} \Omega.m$:

Afin d'apporter davantage information à priori, j'ai attribué une grande valeur de résistivité ($1.10^{13} \Omega.m$) à une forme quasi-cylindrique en fond de cuve. Une coupe de cette géométrie est représentée figure 5.19. On peut y voir en blanc les voxels actifs auxquels on attribue la valeur de résistivité de l'eau, soit $20 \Omega.m$, et en gris les voxels correspondant au cylindre en PVC.

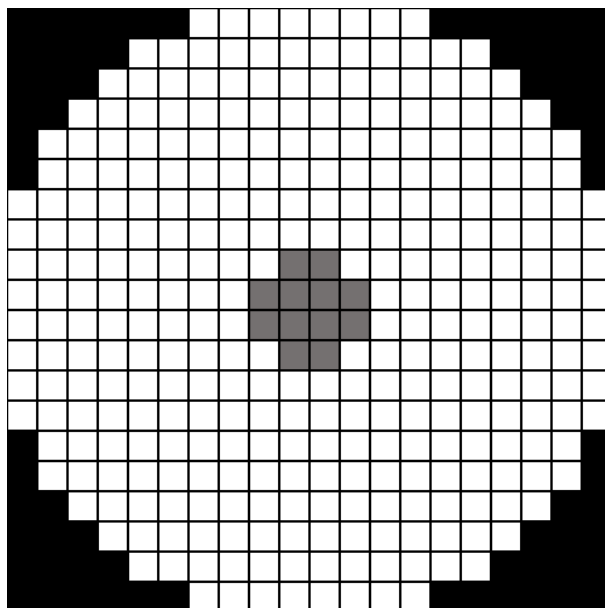


FIGURE 5.19 – *Représentation en coupe du cylindre modélisé sur le maillage de la cuve.*

La figure 5.20 donne le résultat de l'inversion du jeu de données avec ce modèle initial, après deux itérations. La figure 5.21 représente la même chose après 15 itérations. Avec deux itérations, on obtient un résultat extrêmement proche du modèle initial. Après 15 itérations, on remarque que le code diverge légèrement, et qu'il faut introduire un critère pour l'arrêt du calcul dans ce cas de figure, même si le très fort contraste de résistivité entre le PVC et l'eau légèrement salée ne facilite pas la convergence.

Afin de vérifier la stabilité de RESINVM3D, nous avons généré un bruit aléatoire et l'avons appliqué à hauteur de 3% à la résistivité du modèle initial. Après 7 itérations, le résultat de l'inversion des données de résistivité avec le cylindre en PVC en fond de cuve, est excellent, malgré le bruit apporté artificiellement (cf. figure 5.22).

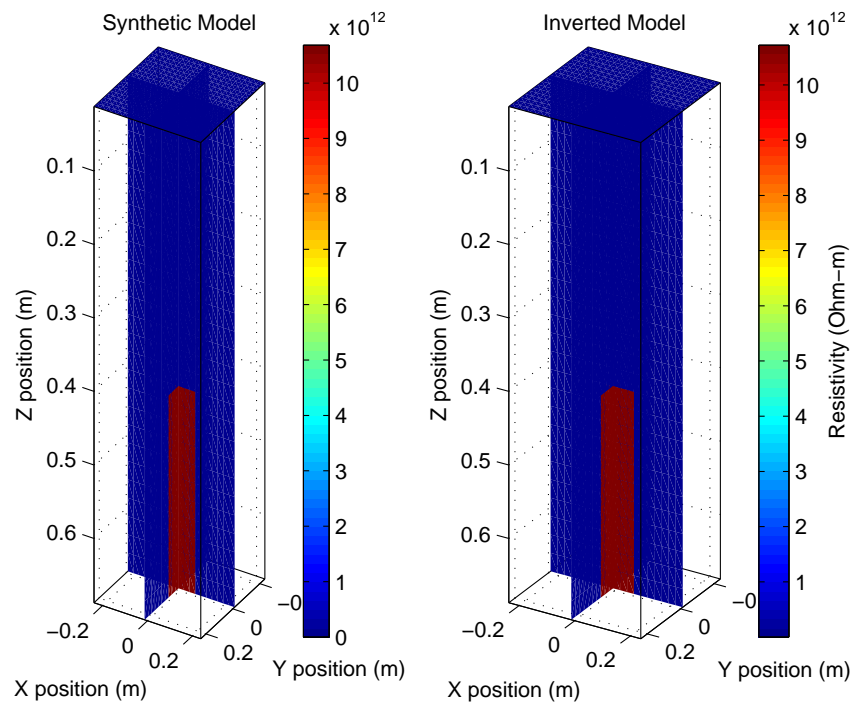


FIGURE 5.20 – Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Après 2 itérations.

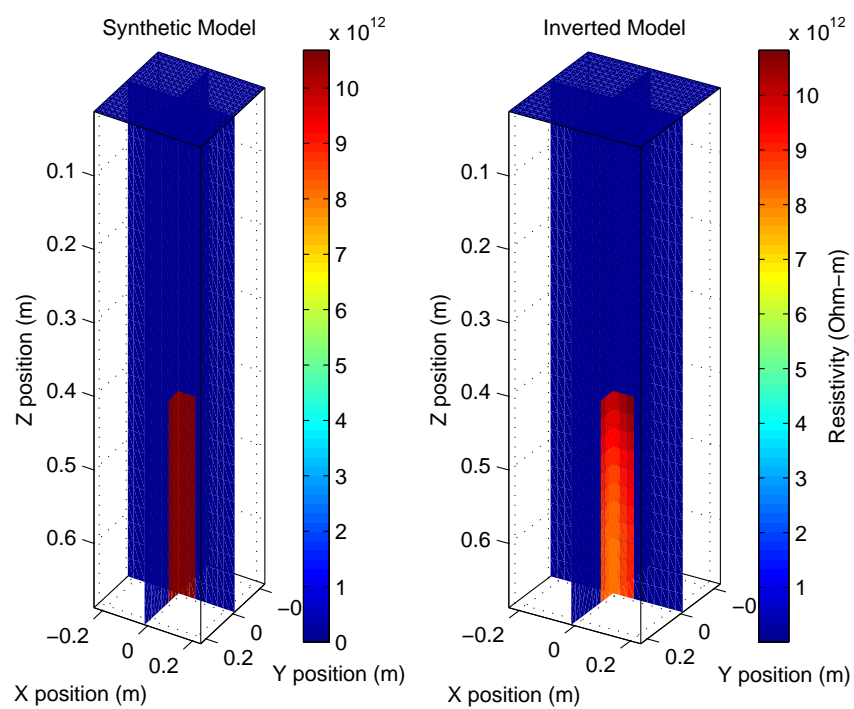


FIGURE 5.21 – Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Après 15 itérations.

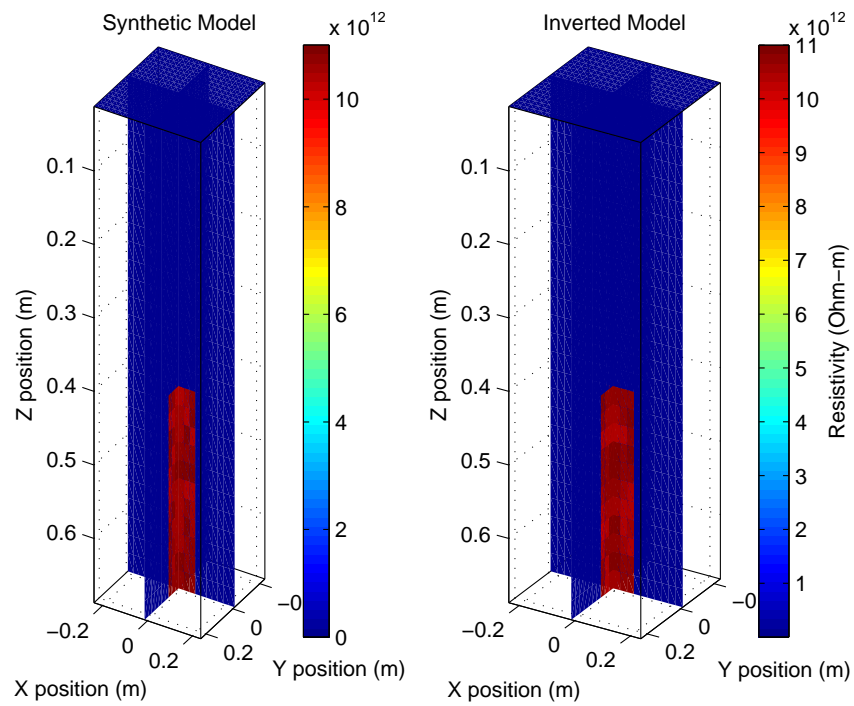


FIGURE 5.22 – Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Pour cette inversion le modèle initial a été bruité aléatoirement à hauteur de 3%. Après 7 itérations.

5.4.2.3 Inversion après le déplacement miscible grâce à RESINV3D

Après ce test, nous avons inversé les données obtenues à la fin du déplacement miscible présenté au paragraphe 5.4.1. La conductivité initiale de l'eau saturant le sable est initialement équilibrée à $2.10^{-4} S.m^{-1}$, et celle de l'eau injectée est de $1 S.m^{-1}$. Ainsi, avec un modèle initial uniforme de résistivité $5000\Omega.m$, le code d'inversion RESINV3D converge rapidement vers la solution représentée dans la figure 5.23.

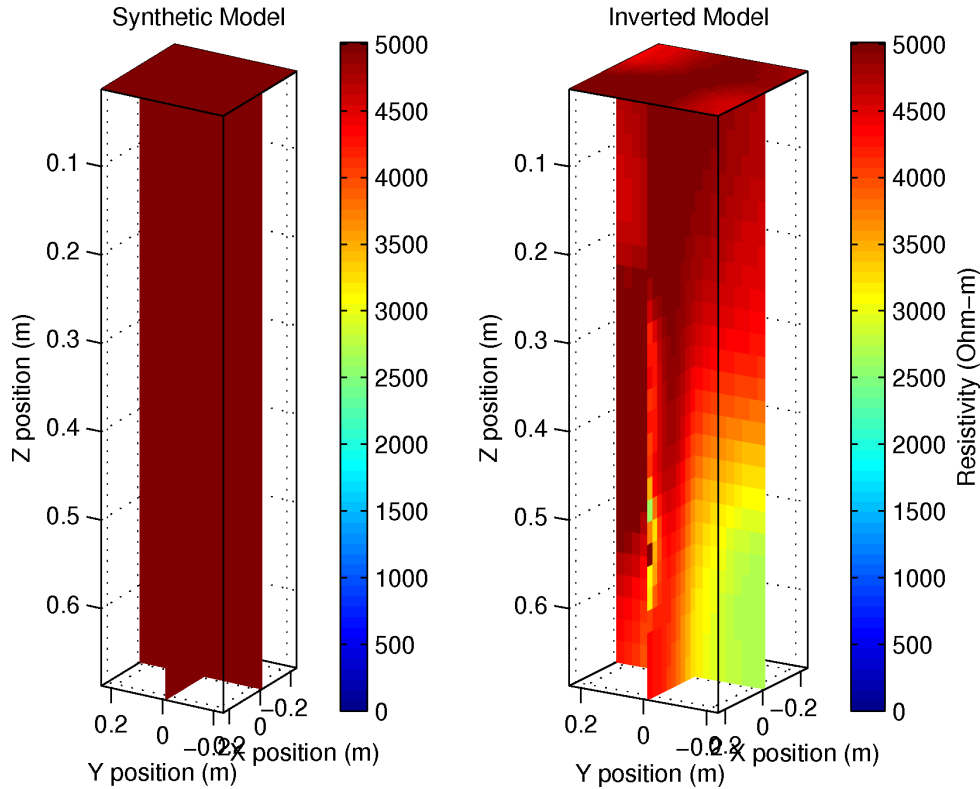


FIGURE 5.23 – Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINV3D (à droite) à partir d'un modèle initial uniforme (à gauche) de $5 k\Omega.m$. Après 7 itérations.

On y voit un panache atteignant le fond de la cuve, d'une valeur de résistivité de $3000 \Omega.m$ environ, soit une conductivité de $3.3.10^{-4} S.m^{-1}$, ce qui pourrait correspondre à un panache salé dilué après percolation. Cette variation de 40% de la conductivité dans la cuve est significative.

5.5 Conclusions et perspectives

Le suivi du panache d'eau salée, introduit dans le paragraphe 5.4.1, illustre que le PS est un outil adapté pour suivre l'avancée d'une solution ayant un contraste de conductivité électrique avec l'eau saturant le milieu granulaire initial. On observe en effet une variation du potentiel spontané supérieure à $30 mV$ lors de l'injection d'eau salée dans la sable saturé d'eau douce. L'ordre de grandeur de cette valeur est vérifié grâce au calcul du potentiel de diffusion généré par

l'établissement d'un tel gradient de concentration d'un sel dans un sable (Maineult *et al.*, 2005). La contribution de ce potentiel d'électrodiffusion est ici estimée à 21 *mV*. La différence entre ces deux valeurs peut être attribuées aux autres phénomènes contribuant au PS, dont notamment l'électrocinétisme.

De plus cette série de tests avec paliers d'injections a illustré que l'ERT est une méthode délicate à utiliser à cette échelle, avec une très petite distance inter-électrodes. Le dispositif est maintenant optimisé pour respecter les contraintes de la méthode, avec de petites électrodes, respectant le principe de ponctualité, polies miroir pour éviter d'offrir des prises à l'oxydation, et l'injection de relativement faibles courants électriques pour minimiser autant que possible tout phénomène de polarisation sur les électrodes de résistivité.

Le code RESINVM3D est un bon outil pour inverser des données d'ERT, et est maintenant adapté à la géométrie du modèle réduit cylindrique de réservoir. Il permet à l'utilisateur de contrôler chaque étape du processus d'inversion. L'inversion pourrait cependant être améliorée par la programmation d'un nouveau protocole d'injection de courant et de mesure de potentiels. En effet, ce protocole avait été programmé pour une inversion par panneaux 2D avec RES2DINV, et non pas pour une géométrie réellement 3D, qui pourrait être prise en compte par un code comme RESINVM3D.

Ainsi, le dispositif expérimental et une méthode d'inversion de la distribution de résistivité électrique sont opérationnels pour aborder les expériences de percolation réactive en milieu granulaire. Celles-ci consisteront prioritairement en un suivi par PS et ERT d'injections de solutions saturées en calcium dans un sable pour imager la précipitation de calcite.

Quatrième partie

Mesures géophysiques sur le terrain : le cas d'une « fumerolle tectonique »

Chapitre 6

Etude de de la source chaude de Syabru-Bensi, Népal central

6.1 Introduction

Afin de me familiariser avec les méthodes géophysiques de terrain, et appréhender les contraintes inhérentes à cette échelle et à un contexte géologique complexe, j'ai pris part en décembre/janvier 2006-2007 à une mission au Népal, sur la source chaude de Syabru-Bensi, sous la direction de Frédéric Perrier. Cette campagne était menée conjointement par l'IPGP et le National Seismic Centre, Department of Mines and Geology de Katmandou. Il s'agissait de caractériser le plus précisément possible la zone entourant les sources chaudes, située sur une faille active, où un très important dégagement de CO_2 accompagne l'eau chaude.



FIGURE 6.1 – *Panorama du village de Syabru-Bensi et de la rivière Trisuli. Les sources chaudes se situent sur le même versant Nord, en bas à droite de la photo.*

Pendant cette campagne, un large panel de méthodes géophysiques a été utilisé : mesures de flux de CO_2 et de Radon au sol, ERT, PS, RADAR géologique, profils thermiques, prélèvements (eau, gaz, sol, végétaux). La compréhension de la physique de ce site unique pourrait être riche en enseignement dans la recherche concernant la prédiction de séismes. A titre plus personnel, cette mission m'a permis de me former aux mesures de terrain, et j'ai principalement contribué aux mesures de flux de CO_2 que je détaillerai ici. Les résultats sont compilés dans deux articles fournis en annexe.

6.2 Présentation du site

Les sources chaudes de Syabru-Bensi sont situées sur le *Main Central Thrust* (MCT), chevauchement central principal. Cette zone de failles a une structure géologique et géométrique complexe. Le MCT est considéré actuellement comme étant inactif, et serait connecté au *Main Himalayan Thrust* (MHT), chevauchement principal himalayen, en profondeur. Ce dernier est actif, et les sources étudiées ici sont situées à l'aplomb de cette jonction, comme représenté figure 6.2.

L'origine des quantités importantes de gaz mesurées sur cette zone serait donc le métamorphisme profond, la remontée du CO_2 étant assurée par un réseau de failles préférentielles, activé par une activité microsismique continue, et connecté au système hydrothermal.

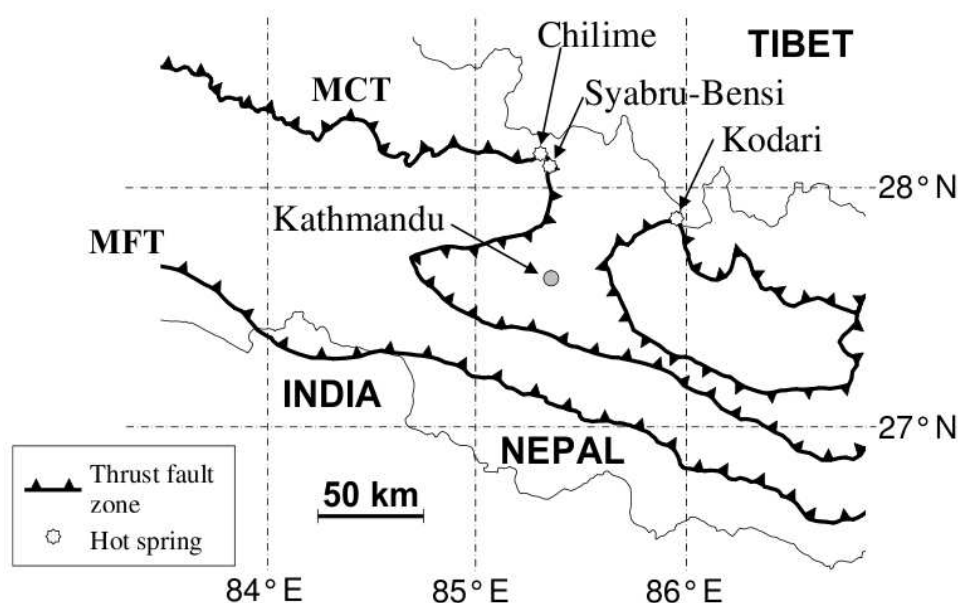


FIGURE 6.2 – Situation géographique des sources chaudes de Syabru-Bensi.

D'un point de vue géologique, ces sources se situent dans des formations de gneiss et de schistes, avec des lits de carbonates intercalés à proximité (cf. figure 6.3).

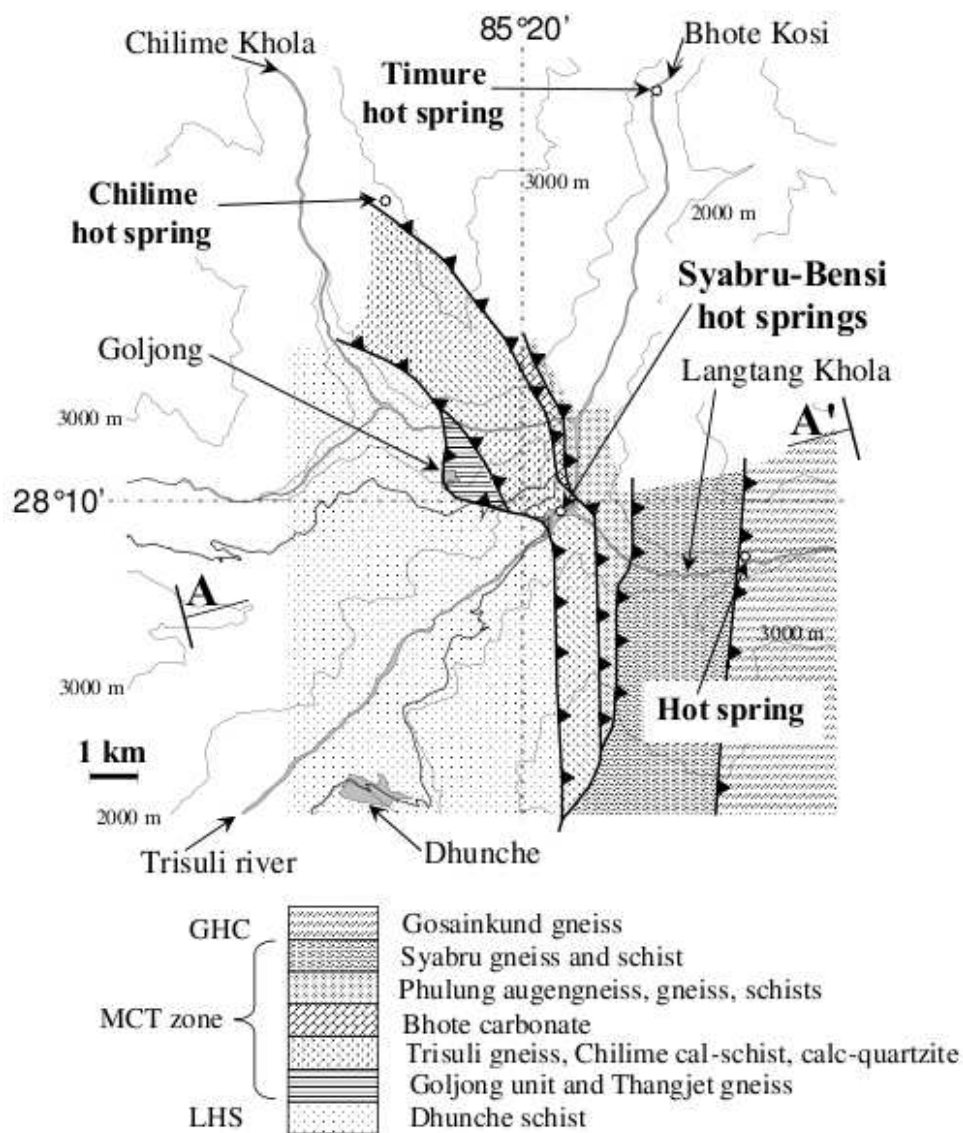


FIGURE 6.3 – Carte géologique de la région d'intérêt.

6.3 Mesure des flux de CO_2

Les flux de CO_2 au sol ont été mesurés grâce à une méthode par accumulation dans une chambre. Le principe est de mesurer l'évolution de la concentration dans la chambre au fil de temps, la surface de mesure au sol et le volume de la chambre étant connus. Le matériel utilisé est représenté sur la figure 6.4.

La chambre dispose d'un volume de 14l et d'une surface au sol de 0,11 m^2 . La zone d'étude a été préalablement grattée pour chaque point de mesure sur une profondeur de 5 à 10cm afin d'enlever la couche supérieure du sol pouvant fausser les mesures et d'aplanir la surface. Ensuite, la chambre étant mise en place et son pourtour étanchéifié grâce à de la terre humide,



FIGURE 6.4 – *Chambre d'accumulation et capteur de concentration de CO_2 TESTO 535.*

la concentration a été acquise pendant 10min, sauf dans le cas des très fortes émissions qui causaient la saturation en CO_2 dans la chambre avant cette limite.

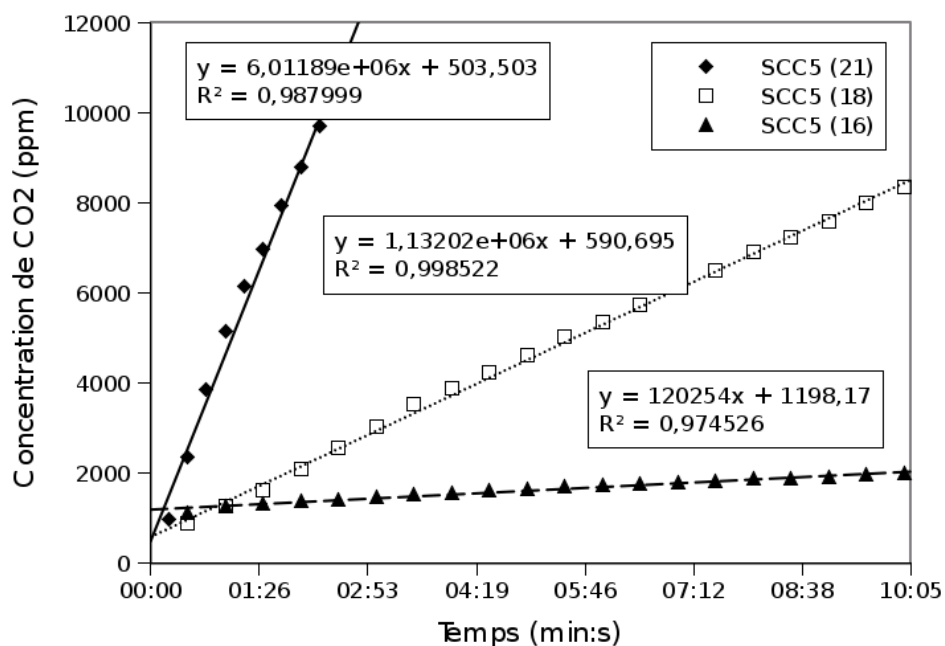


FIGURE 6.5 – *Données brutes de concentration en fonction du temps avec leurs ajustements linéaires pour trois points du profil C2. Les pentes obtenues par ces régressions linéaires sont notées sur ce graphique en $ppm.j^{-1}$.*

Les courbes de la figure 6.5 sont les séries temporelles de concentration de CO_2 dans la

chambre d'accumulation pour trois points du profil C2 (cf. position fig. 6.6). On peut remarquer trois rapports dc/dt très différents, avec un premier point (21) pour lequel la saturation du capteur en CO_2 (1%) est atteinte en deux minutes et vingt secondes, et deux points (18) et (16) pour lesquels les concentrations en CO_2 dans la chambre sont respectivement de 8351 ppm et 1989 ppm après dix minutes d'acquisition.

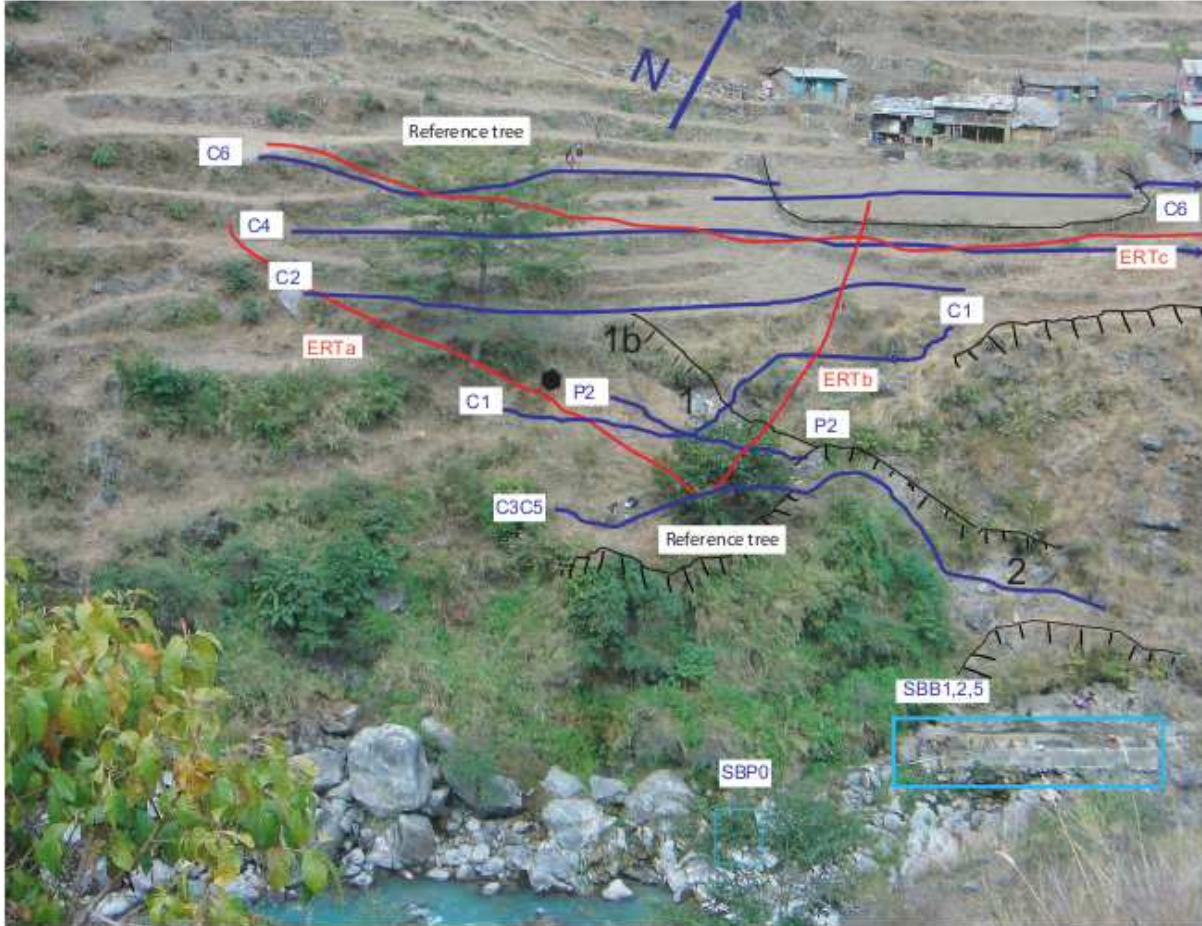


FIGURE 6.6 – Zone d'étude autour des sources chaudes, notées SBB1-5 comme dans Perrier et al. (soumis), et zones de fort dégagement gazeux avec déposition de sulfates et sulfides (notées 1, 1b, 2). Les lignes rouges indiquent les profils de résistivité électrique (ERTa, ERTb, ERTc) et les lignes bleues les profils de CO_2 . L'hexagone noir plein est le point pris pour référence lors des mesures de PS.

À titre d'exemple, nous allons calculer le flux de CO_2 en $g.m^{-2}.jour^{-1}$ en ces trois points par la formule suivante (Perrier et al., 2009) :

$$F = \frac{V_{acc} p M}{S_{acc} R T} \frac{dc}{dt} \quad , \quad (6.1)$$

avec F le flux de CO_2 en $g.m^{-2}.j^{-1}$, V_{acc} le volume de la chambre d'accumulation en m^3 , S_{acc} la surface de sa base en m^2 , p la pression atmosphérique en Pa , T la température absolue en K ,

M la masse molaire du CO_2 , 44 g.mol^{-1} , et R la constante des gaz parfaits, $8,31 \text{ J.mol}^{-1}.K^{-1}$.

Ainsi, connaissant le volume et la surface de la chambre d'accumulation, la pression atmosphérique et la température au moment de la réalisation du profil ($8,6.10^4 \text{ Pa}$, 283 K), l'équation ci-dessus devient :

$$F = \frac{14.10^{-3}}{0,11} \frac{8,6.10^4 \times 44}{8,31 \times 283} \frac{dc}{dt} = 6,01189 \frac{dc}{dt} \quad . \quad (6.2)$$

On obtient ainsi respectivement pour les points (21), (18), et (16) du profil C2 de flux de CO_2 en surface des valeurs de $1230,4 \text{ g.m}^{-2}.j^{-1}$, $231,7 \text{ g.m}^{-2}.j^{-1}$, et $24,6 \text{ g.m}^{-2}.j^{-1}$.

6.4 Résultats et discussion

6.4.1 Flux de dioxyde de carbone

Dans un souci de précision, les valeurs de flux ont en fait été calculées en utilisant un ajustement à trois paramètres (Perrier *et al.*, 2009) et non une régression linéaire comme présenté partie 6.3. Les profils de flux de CO_2 ainsi obtenus sont placés sur une carte du site, et une interpolation entre ces quelques 300 points de mesure permet de tracer la carte représentée figure 6.7 (Byrdina *et al.*, 2009). L'erreur relative systématique estimée pour ces mesures est de 15%, ce qui est suffisant dans le cadre de cette étude (Perrier *et al.*, 2009 ; Girault, 2008).

Les dégagements très importants de CO_2 enregistrés durant la campagne préliminaire de 2005 ont été confirmés par la carte détaillée établie en 2007 (cf. fig. 6.7). On retrouve le détail des flux calculés à partir des différentes mesures pour le profil C2 sur la figure 6.8. En général, on a donc observé autour des sources chaudes principales des zones d'importante émission de CO_2 , bien localisées. Ainsi, sur le profil C1 (cf. figure 6.6) qui traverse les dépôts de sulfure et sulfates, le flux de dioxyde de carbone atteint des valeurs telles que $19000 \text{ g.m}^{-2}.day^{-1}$, et la largeur de la zone de dégazage est supérieure à 15 m .

Pour le profil C2 (figure 6.8), situé en amont de l'exutoire principal de CO_2 , le flux atteint une valeur de $4400 \text{ g.m}^{-2}.day^{-1}$. Le profil en cloche présente une largeur à mi-hauteur de 15 m environ, comme dans le cas du profil C1. De plus, on remarque que les trois acquisitions de C2, séparées de quelques jours à deux ans, se superposent de manière très satisfaisante en première approximation, ce qui nous indique que le dégazage est stable sur cette période de deux ans. Ceci est également une indication très satisfaisante quant à la précision de la méthode de mesure utilisée. De plus, cette figure présente également le même profil en flux de radon-222, qui présente un important maximum de $660 \pm 30.10^{-3} \text{ Bq.m}^{-2}.s^{-1}$ au même endroit. Les mesures de flux de radon ne seront pas discutées en détail ici (Perrier *et al.*, 2009).

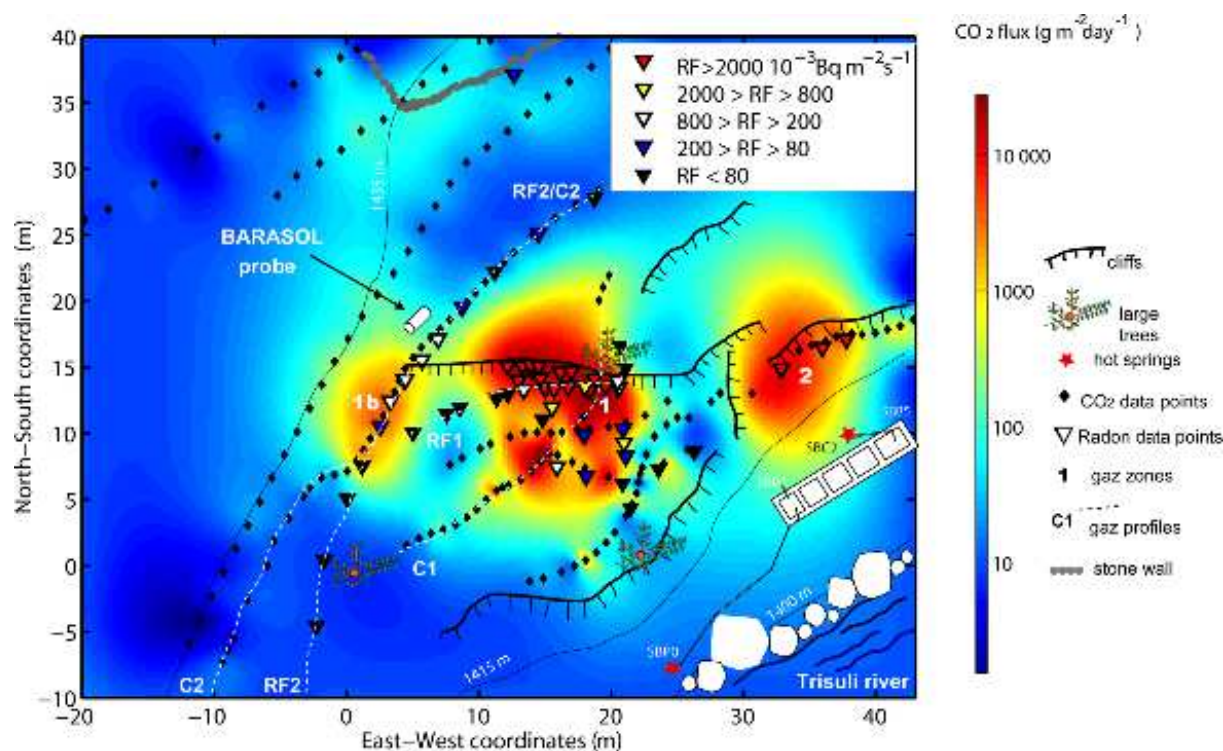


FIGURE 6.7 – Carte du CO_2 interpolé sur le site des sources chaudes de Syabru Bensi. Les triangles permettent de représenter les données de mesure de flux de radon-222 (Rn) sur la même carte.

En dehors du pic, le flux de dioxyde de carbone montre une valeur de fond assez uniforme comprise entre 10 et $25 \text{ g.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$, compatible avec les valeurs mesurées en octobre 2006 dans la vallée de Katmandou par la même méthode, et avec les valeurs usuelles de flux de fond dans les zones géothermales et volcaniques (Chiodini *et al.*, 1998).

On peut ainsi, grâce à ces nombreux (plus de 70) points de mesure, estimer avec une précision raisonnable la quantité totale de dioxyde de carbone émis dans le voisinage de l'exutoire gazeux principal (zone 1 et 1b sur la figure 6.6). Le flux diffusif total à la surface du sol en zone 1 est donc de $0,25 \pm 0,07 \text{ mol.s}^{-1}$. Cette valeur ne tenant pas compte des points de décharge secondaire situés sur des terrasses escarpées inadaptées à une mesure par chambre d'accumulation est donc une estimation minimale de l'exhalaison principale du système en dioxyde de carbone.

La valeur maximale de flux de CO_2 rencontrée à Syabru Bensi, $19000 \text{ g.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$, est spectaculaire, et similaire à des valeurs observées sur certains volcans. Généralement, les flux enregistrés au sol sur les volcans et systèmes géothermaux sont même inférieurs. De plus, les valeurs obtenues à Syabru Bensi sont largement supérieures aux valeurs obtenues dans le voisinage des failles actives de Californie, soit entre 4 et $428 \text{ g.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$.

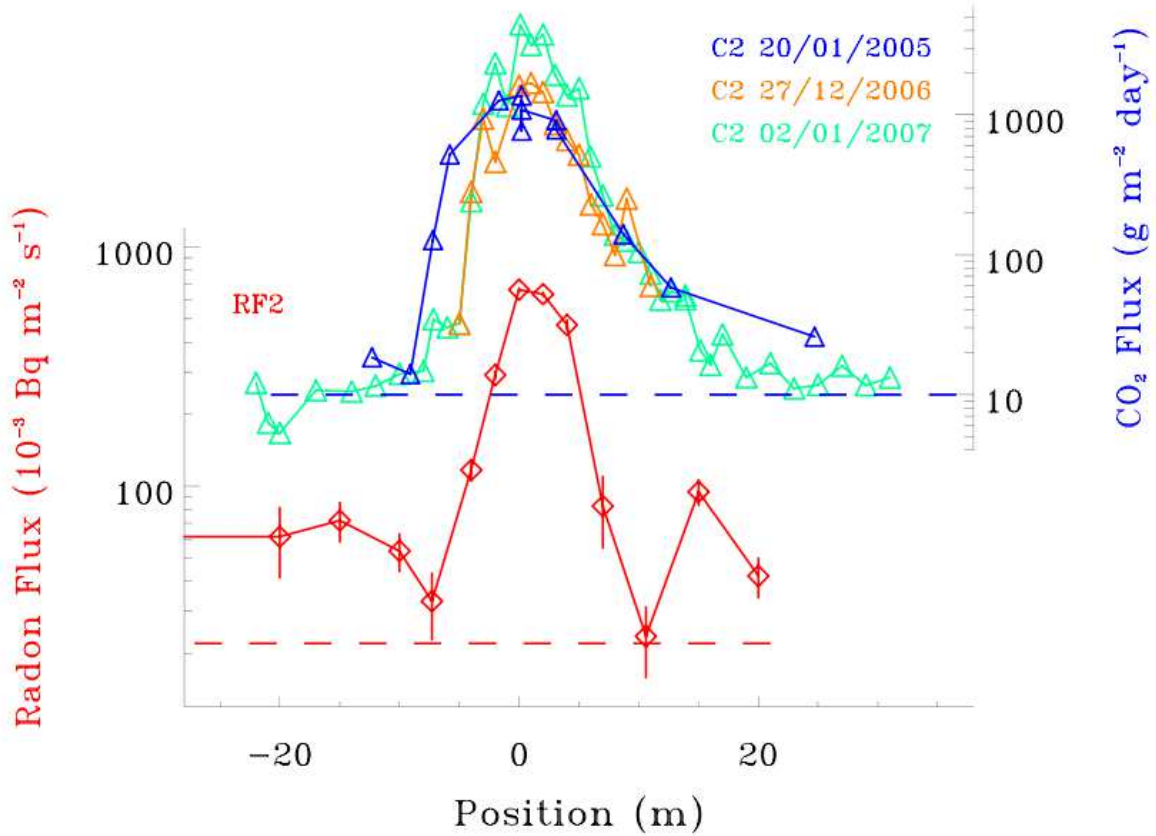


FIGURE 6.8 – En haut, flux de CO_2 au sol le long du profil C2 à trois dates différentes. En bas, flux de radon sur le même profil.

6.4.2 Comparaison aux autres données et interprétation

La figure 6.9 représente la valeur interpolée du Potentiel Spontané (PS) au sol pour la zone d'étude autour des sources chaudes de Syabru Bensi (Byrdina *et al.*, 2009). Cette carte a été calculée à partir de plus de 1000 points de mesure effectués 15000 m^2 avec des électrodes Petiau $Pb/PbCl$ en prenant pour référence un point extérieur aux exutoires gazeux principaux. Les valeurs de flux de radon sont également représentées localement sur cette carte, ainsi que celles de flux de CO_2 sous forme de courbes de niveau.

On remarque tout d'abord l'existence de fortes anomalies dipolaires de PS au niveau des principaux points d'émission de gaz. Ces dipôles, d'une amplitude voisine de 200 mV sont alignés parallèlement aux escarpements des terrasses, perpendiculairement à la pente. Ces dipôles sont situés dans les régions de fort flux de CO_2 si l'on regarde les courbes de niveau. Ceci est parfaitement vrai en zone 1 (cf. figure 6.6), et est moins évident pour les exutoires secondaires.

Intéressons-nous au détail des profils de CO_2 et de PS acquis le même jour au même endroit (Byrdina *et al.*, 2009). La figure 6.10 superpose ces données pour trois zones différentes du site.

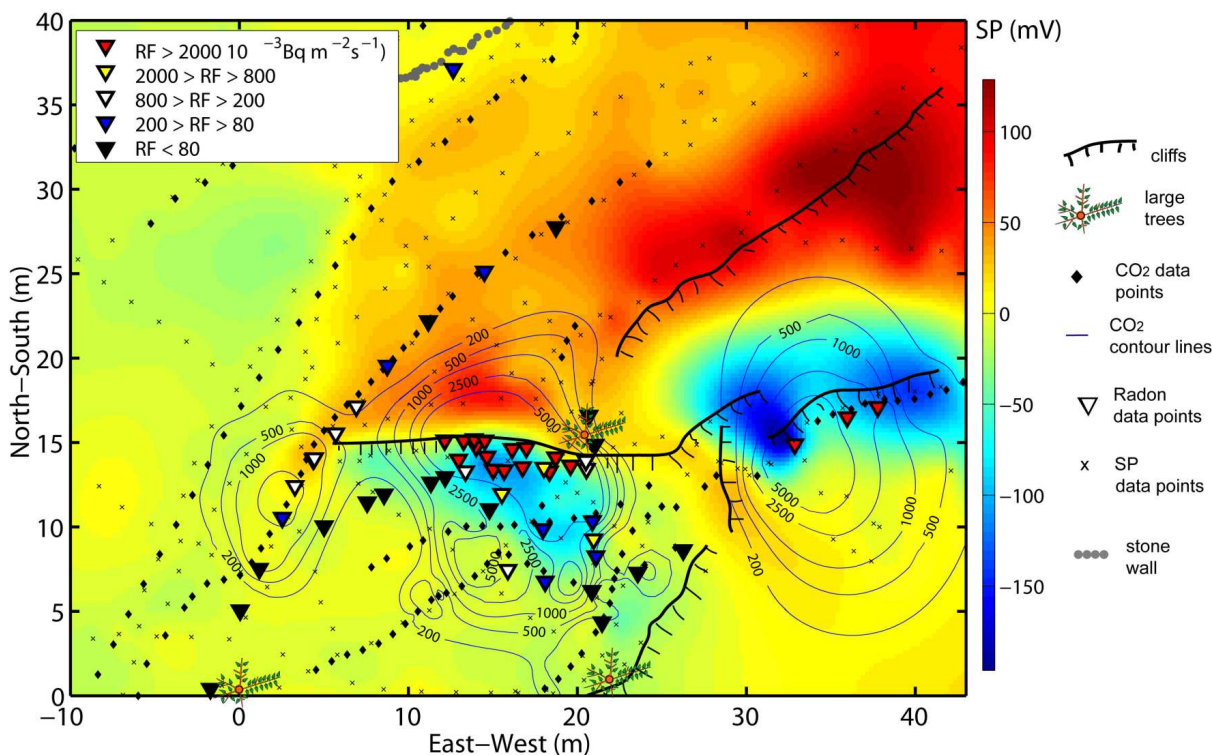


FIGURE 6.9 – *Potentiel Spontané dans le voisinage des sources chaudes de Syabru Bensi. Flux local de radon-222 et niveau de flux de CO_2 au sol.*

Pour les profils *P1* et *C1*, une anomalie négative de *PS* coïncide avec le pic de flux de CO_2 . Pour le profil *C2*, le comportement est différent, avec une marche positive du *PS* au passage du pic de CO_2 .

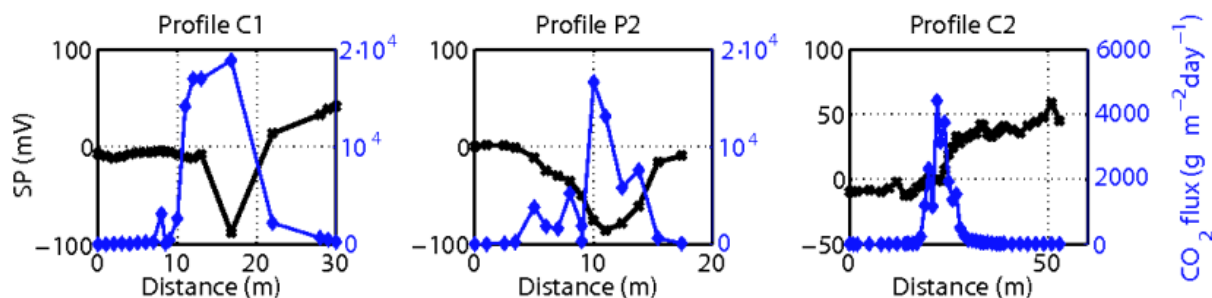


FIGURE 6.10 – *Flux de CO_2 au sol (en bleu) et Potentiel Spontané (en noir) pour les profils *C1*, *P2* et *C2*.*

Ceci met en valeur le lien complexe existant dans cette région entre la circulation importante de fluides et les anomalies de *PS* générées. Ceci est l'objet du modèle numérique proposé par Svetlana Byrdina (Byrdina *et al.*, 2009), qui permet de prédire ces anomalies de *PS* grâce à un modèle de sous-sol permettant un flux montant dans la zone de fracture et un flux descendant vers les sources chaudes, tout en étant en accord avec la distribution hétérogène de résistivité électrique obtenue d'après les profils ERT inversés.

6.5 Conclusions

On a donc mesuré autour des sources chaudes de Syabru-Bensi de très hauts flux de CO_2 au sol, atteignant localement une valeur de $19000\text{ g.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$, comparable aux valeurs maximales sur les volcans actifs, comme le Stromboli par exemple. Les valeurs maximales de flux de $Rn - 222$ sont également très importantes, dépassant localement $2\text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Le niveau de base de CO_2 mesuré est dans la norme, variant de 10 à $25\text{ g.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$, ce qui est comparable à d'autres mesures effectuées dans la vallée de Kathmandu avec la même méthode. De plus, on a observé que ces zones d'importants flux de CO_2 étaient stables sur une période de plus de deux ans, avec une excellente répétabilité des mesures.

Le flux de CO_2 intégré à l'ensemble de la zone entourant l'exutoire principal est de $0,25 \pm 0,07\text{ mol.s}^{-1}$, soit $1 \pm 0,3\text{ tonnes.j}^{-1}$! Cette valeur représente environ 1% du carbone issu de l'érosion chimique des silicates charrié par la rivière Trisuli. Or l'altération est pourtant très importante du fait de la topographie élevée de l'Himalaya et des pluies importantes intervenant dans la région lors de la mousson. Ces sources de gaz sec ne sont donc pas à négliger au moment d'établir le bilan de carbone global de cette région.

De plus, le système de Syabru-Bensi étant situé à moins de 20 km de la zone de nucléation sismique, ce site est très intéressant pour étudier les processus précédant le prochain grand séisme himalayen attendu au Népal (Perrier *et al.*, 2009).

Enfin, l'étude des processus et du couplage entre les différentes observables sur ce site complexe nous a permis de modéliser l'anomalie dipolaire de PS mesurée au niveau des exutoires principaux de CO_2 . En accord avec les structures hétérogènes mises en valeur par les profils d'ERT, ce signal de PS peut s'expliquer par la remontée du fluide dans une zone fracturée associée à un écoulement gravitationnel en direction des sources chaudes (Byrdina *et al.*, 2009). Cette modélisation est une première description de ce type de génération de courant associée à une circulation géothermale dans une zone active.

Cinquième partie

Conclusions générales

Chapitre 7

Conclusions et perspectives

Dans cette thèse, nous avons tout d'abord étudié l'effet d'injections d'une solution d'eau saturée en CO_2 sur les propriétés électriques et élastiques de deux échantillons décimétriques de calcaire calcitique de niveaux d'hétérogénéité et de perméabilité différents. Pour ce faire, nous avons mis au point un dispositif expérimental permettant l'acquisition *in situ* des principaux paramètres physico-chimiques de la roche et du fluide, à savoir le pH et la conductivité électrique du fluide (σ_{fluide}), ainsi que son débit et sa pression en amont et en aval de l'échantillon, donnant accès à la perméabilité. Des électrodes en inox ont également permis de mesurer la conductivité électrique de la roche saturée (σ_{roche}), tandis qu'un couple de transducteurs piézométriques à $1MHz$ montés sur un banc coulissant nous permettait de mesurer par transmission l'évolution de la vitesse et l'amplitude des ondes sismiques au cours de l'expérience le long de l'échantillon.

De plus, des prélèvements réguliers de fluide en aval de l'échantillon étudié ont permis de procéder à des analyses *ex situ* et de déterminer ainsi la concentration en ions $[Ca^{2+}]$ et l'alcalinité après percolation (Vialle, 2008). Les expériences ont été longues, jusqu'à un mois de temps de circulation effectif.

Ces résultats ont été complétés par un important volet de caractérisation pétrophysique des échantillons avant et après injection. Ainsi, les échantillons ont été cartographiés en trois dimensions par tomodensitométrie au scanner à rayons X, leur porosité totale a été déterminée par porosimétrie mercure et triple pesée. De plus des lames minces ont été réalisées pour permettre une caractérisation à l'échelle du pore par microscopie. La perméabilité a été déterminée à l'air et à l'eau avec un perméamètre macroscopique, et l'hétérogénéité des échantillons quantifiés par une méthode de déplacement miscible.

Ces expériences de percolation réactive ont permis de mettre en évidence la bonne cohérence des résultats obtenus par des méthodes indépendantes. Ainsi, les variations de porosité calculées par le facteur de formation électrique, par les profils longitudinaux de vitesse et d'atténuation des ondes sismiques acquis durant l'injection, ou par la mesure de la quantité de calcium dissous en sortie d'échantillon sont équivalents. On a ainsi pu observer pour les échantillons de calcaire

des Estaillades et de Saint-Maximin une augmentation de la perméabilité d'un ordre de grandeur pour une augmentation de porosité de, respectivement, $(2,7 \pm 0,7)\%$ et $(1,7 \pm 0,7)\%$. Ces deux valeurs sont les valeurs moyennes des variations de porosité obtenues par les trois méthodes, chimique, électrique, et sismique, pour les deux lithologies.

Les trois méthodes utilisées pour suivre l'évolution de la porosité au cours du temps se sont avérées intéressantes, montrant que l'on pouvait avoir une première quantification de l'effet sur la porosité d'une roche des réactions de dissolution-précipitation de calcite par injection de CO_2 par méthodes géophysiques. La vitesse des ondes P et le facteur de formation assurent ainsi parfaitement leur fonction d'observable géophysique. De plus, d'un point de vue qualitatif, la tomodesitométrie a permis de contrôler l'exactitude de la localisation des fronts de dissolution-précipitation déterminée par la mesure des amplitudes des ondes S, et prédite déjà par l'étude de l'évolution des profils de vitesse des ondes P. Le volet de microscopie n'a pas permis de montrer de manière univoque la précipitation de calcite secondaire dans l'échantillon de calcaire des Estaillades à l'échelle du pore. En effet, ni la microscopie électronique à balayage ni la cathodoluminescence n'ont permis la mise en évidence de cette phase détectée macroscopiquement par les rapports d'amplitude des ondes S et confirmée par la tomodesitométrie. Lors des prochaines expériences de percolation réactive dans un calcaire réalisée avec ce dispositif, il serait judicieux d'ajouter une petite quantité d'ions Mn^{2+} à la solution injectée. En effet, ce sont ces ions qui permettent l'imagerie de la calcite par cathodoluminescence, et les franges déposées deviendraient particulièrement visibles grâce à ce traceur.

À une échelle spatiale supérieure, quasi-métrique, nous avons mis au point un dispositif expérimental de suivi géoélectrique d'injections de fluides en milieu granulaire. Le suivi d'injections par PS dans cette cuve est opérationnel, la qualité des signaux des électrodes de PS étant satisfaisante et le traitement des données aisé. L'ERT permet de suivre l'évolution de la résistivité électrique du milieu poreux, et on attend de cette méthode un suivi de la porosité dans le cas d'expériences de dissolution et précipitation. Si le dispositif expérimental ainsi que la méthode d'inversion de la résistivité électrique sont maintenant opérationnels, le protocole d'injection des courants et de mesure des potentiels pourrait être optimisé pour la géométrie à trois dimensions du dispositif. Ce dernier peut déjà, en l'état, permettre convenablement la réalisation des premiers tests de percolation réactive, avec par exemple le suivi PS/ERT de la précipitation de calcite lors de l'injection de solutions saturées en calcium dans un sable.

Sur le terrain, autour des sources chaudes de Syabru-Bensi (Népal central), nous avons mesuré de très hauts flux de CO_2 au sol, atteignant des valeurs comparables aux valeurs maximales sur les volcans actifs. Ceci correspond donc à un analogue naturel de fuite importante de CO_2 , et nous a permis d'utiliser des méthodes géophysiques (notamment le potentiel spontané) pour caractériser cette émission. Les valeurs maximales de flux de $Rn - 222$ sont également très importantes dans cette zone. La stabilité temporelle de ces mesures a pu être vérifiée avec des pics parfaitement retrouvés sur une période de deux ans. L'intégration du flux de CO_2 aux alentours de l'exutoire principal de gaz atteint une valeur de $1 \pm 0,3 \text{ tonnes.j}^{-1}$, soit une contribution non négligeable au bilan carbone global himalayen. De plus, le système de Syabru-Bensi étant situé à moins de 20 km de la zone de nucléation sismique, ce site est très intéressant pour étudier les processus

précédant le prochain grand séisme himalayen attendu au Népal (Perrier *et al.*, 2009). Enfin, l'étude des processus et du couplage entre les différentes observables sur ce site complexe nous a permis de modéliser l'anomalie dipolaire de PS mesurée au niveau des exutoires principaux de CO_2 . En accord avec les structures hétérogènes mises en valeur par les profils d'ERT, ce signal de PS peut s'expliquer par la remontée du fluide dans une zone fracturée associée à un écoulement gravitationnel en direction des sources chaudes (Byrdina *et al.*, 2009). Ce modèle est une première description de ce type de génération de champs de potentiel associée à une circulation géothermale dans une zone active.

De nombreux projets d'injection de CO_2 sont initiés aujourd'hui dans le monde, qu'il s'agisse de récupération assistée d'huile (EOR) ou de gaz (ECMR, Enhanced Coalbed Methane Recovery), de stockage à des fins économiques vis à vis de la législation (Sleipner), ou de pilotes de séquestration visant à valider les processus technologiques (e.g. projet Otway CO2CRC, Australie). Si tous n'ont pas aujourd'hui pour cible des formations carbonatées profondes, cela reste la cible privilégiée à moyen à long terme en raison des gigantesques volumes de roche encaissante disponible sous cette forme. Ce type d'étude de laboratoire, en amont des contraintes du terrain, est nécessaire dans le cadre du monitoring d'un site de piégeage minéral du dioxyde de carbone, ou pour comprendre les effets hydrauliques des réactions de dissolution-précipitation de la calcite lors d'une injection en aquifère salin.

Références

- (1992). *Rapport de la Conférence des Nations Unies sur l'environnement et le développement, Rio de Janeiro*. Nations Unies.
- (2002). *Workshop on Carbon Dioxide Capture and Storage*, Regina, Canada. Intergovernmental Panel on Climate Change, ECN.
- (2007). *Capter et stocker le CO₂ dans le sous-sol*. Les enjeux des géosciences. BRGM éditions.
- AMIEUX, P. (1982). La cathodoluminescence : méthode d'étude sédimentologique des carbonates. *Bulletin des centres de recherches exploration-production, Elf-Aquitaine*, (6):437–483.
- ARCHIE, G. E. (1942). The electrical resistivity log as an aid to determining some reservoir characteristics. *Transaction of the American Institute of Mining Engineers*, 146:54–61.
- BACHU, S., GUNTER, W. D. et PERKINS, E. H. (1994). Aquifer disposal of CO₂ : Hydrodynamic and mineral trapping. *Energy Conversion and Management*, 35:269–279.
- BENTHAM, M. et KIRBY, M. (2005). CO₂ Storage in Saline Aquifers. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, 60:559–567.
- BERGMAN, P. D., WINTER, E. M. et CHEN, Z. (1997). Disposal of power plant CO₂ in depleted oil and gas reservoirs in Texas. *Energy Conversion and Management*, 38:S211–S216.
- BIRCH, F. (1960). The Velocity of Compressional Waves in Rocks to 10 Kilobars, Part 1. *Journal of Geophysical Research*, 65:1083–+.
- BOURBIÉ, T., COUSSY, O. et ZINSZNER, B. (1986). *Acoustique des milieux poreux*. Editions Technip.
- BROSSE, E., MAGNIER, C. et VINCENT, B. (2005). Modelling Fluid-Rock Interaction Induced by the Percolation of CO₂-Enriched Solutions in Core Samples : The Role of Reactive Surface Area. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, 60:287–305.
- BYRDINA, S., FRIEDEL, S., WASSERMANN, J. et ZLOTNICKI, J. (2003). Self-potential variations associated with ultra-long-period seismic signals at Merapi volcano. *Geophysical Research Letters*, 30:6–1.
- BYRDINA, S., REVIL, A., PANT, S., KOIRALA, B., SHRESTHA, P., TIWARI, D. R., GAUTAM, U., SHRESTA, K., SAPKOTA, S., S., C. et PERRIER, F. (2009). Dipolar self-potential anomaly associated with carbon dioxide and radon flux at the Syabru-Bensi hot springs in Central Nepal. *Journal of Geophysical Research*, 114.

- CHIODINI, G., CIONI, R., GUIDI, M., RACO, B. et MARINI, L. (1998). Soil CO_2 flux measurements in volcanic and geothermal areas. *Applied Geochemistry*, 13:543–552.
- CLAUDAUD, J. (2001). *Étude des propriétés de transport (hydraulique et électrique) des roches*. Thèse de doctorat, Université Denis Diderot Paris VII.
- DARNET, E. (2003). *Caractérisation et suivi de circulations de fluides par la mesure de Potentiels Spontanés (PS)*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strasbourg I.
- DEPOUNTIS, N., HARRIS, C. et DAVIES, M. C. R. (2001). An assessment of miniaturised electrical imaging equipment to monitor pollution plume evolution in scaled centrifuge modelling. *Eng. Geol.*, 60:83–94.
- DUFAUD, F. (2006). *Étude expérimentale des réactions de carbonatation minérale du CO_2 dans les roches basiques et ultrabasiqes*. Thèse de doctorat, Institut de Physique du Globe de Paris.
- FRANCK, M. (1852). *Paracelse et l'alchimie au XVIème siècle*. Lu à la séance publique annuelle des cinq Académies, le 25 octobre 1852 par M. Franck, membre de l'Académie des Sciences Morales et Politiques.
- GIRAULT, F. (2008). Caractérisation et modélisation des flux de dioxyde de carbone et de radon-222 au voisinage du MCT au Népal. Rapport de stage de master 2 géophysique, Institut de Physique du Globe de Paris.
- GONG, G. (2005). *Physical Properties of Alpine Rocks :A Laboratory Investigation*. Thèse de doctorat, Université de Genève.
- GUICHET, X. (2002). *Étude expérimentale des propriétés électriques des roches, potentiels d'électrofiltration, suivi des mouvements de fluides en zones hydrothermales*. Thèse de doctorat, Université Denis Diderot Paris VII.
- GUICHET, X., JOUNIAUX, L. et POZZI, J.-P. (2003). Streaming potential of a sand column in partial saturation conditions. *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)*, 108:2141–+.
- GUÉGUEN, Y. et PALIAUSKAS, V. (1992). *Introduction à la physique des roches*. Hermann, ed. des sciences et des arts, Paris.
- HOEFER, J. C. F. (1858). *Nouvelle biographie générale depuis les temps les plus reculés jusqu'à nos jours*. Firmin Didot Frères, Fils et Cie.
- ISHIDO, T. et MIZUTANI, H. (1981). Experimental and theoretical basis of electrokinetic phenomena in rock-water systems and its applications to geophysics. *Journal of Geophysical Research*, 86:1763–1775.
- JOLY, B. (2002). *Ce que c'est pour moi la philosophie*. <http://stl.recherche.univ-lille3.fr/seminaires/philosophie/macherey/...>
Conférence dans le séminaire de Pierre Macherey : La philosophie au sens large.
- KAHN, D. (2001). Entre atomisme, alchimie et théologie : la réception des thèses d'Antoine de Villon et Etienne de Clave contre Aristote, Paracelse et les 'cabalistes' (24-25 août 1624). *Annals of science ISSN 0003-3790 CODEN ANNSA8*, 58:241–286.
- KEMNA, A. (2002). Imaging and characterisation of subsurface solute transport using electrical resistivity tomography (ERT) and equivalent transport models. *Journal of Hydrology*, 267:125–146.
- KLEIN, J. et ROCHE, B. (2005). Conception d'une interface Labview pour l'étude des effets hydrauliques d'injections de CO_2 en réservoir souterrain. Rapport de stage, Institut de

Physique du Globe de Paris.

- KORBØL, R. et KADDOUR, A. (1995). Sleipner vest CO_2 disposal - injection of removed CO_2 into the utsira formation. *Energy Conversion and Management*, 36.
- KRIGE, D. (1951). A statistical approach to some basic mine valuation problems on the Witwatersrand. *J. of Chem., Metal. and Mining Soc. of South Africa*, 52:119–139.
- LAVOISIER, A.-L. (1774). *Opuscles Physiques et Chimiques*. Durand, Didot, Esprit, Paris.
- LE GUEN, Y. (2006). *Étude expérimentale du couplage chimie-mécanique lors de la percolation d'un fluide réactif dans des roches sous contrainte, dans le contexte de la séquestration géologique du CO_2* . Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I.
- LE GUEN, Y., RENARD, F., HELLMAN, R., BROSE, E., COLLOMBET, M., TISSERAND, D. et GRATIER, J.-P. (2007). Enhanced deformation of limestone and sandstone in the presence of high P_{CO_2} fluids. *Journal of Geophysical Research*, 112.
- LITTRÉ, E. (1877). *Dictionnaire de la langue française, deuxième édition*.
- LOKE, M. et BARKER, R. (1996). Rapid least squares inversion of apparent resistivity pseudosections using a quasi-Newton method. *Geophys. Prospec.*, 44:131–152.
- LOPEZ, O. (2006). *Étude des réactions de précipitation des carbonates de calcium*. Thèse de doctorat, Institut de Physique du Globe de Paris.
- LORNE, B., PERRIER, F. et AVOUAC, J.-P. (1999a). Streaming potential measurements 1. Properties of the electrical double layer from crushed rock samples. *Journal of Geophysical Research*, 104:17857–17878.
- LORNE, B., PERRIER, F. et AVOUAC, J.-P. (1999b). Streaming potential measurements 2. Relationship between electrical and hydraulic flow patterns from rock samples during deformation. *Journal of Geophysical Research*, 104:17879–17896.
- LUCET, N. et ZINSZNER, B. (1992). Effect of heterogeneities and anisotropy on sonic and ultrasonic attenuation in rocks. *Geophysics*, 57.
- MAINEULT, A. (2004). *Application de la méthode du potentiel spontané à l'hydrogéologie : expérimentation sur modèle réduit d'aquifère*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strasbourg I.
- MAINEULT, A., BERNABÉ, Y. et ACKERER, P. (2005). Detection of advected concentration and pH fronts from self-potential measurements. *Journal of Geophysical Research*, 110.
- MAINEULT, A., BERNABÉ, Y. et ACKERER, P. (2006). Detection of advected, reacting redox fronts from self-potential measurements. *Journal of Contaminant Hydrology*, v. 86, iss. 1-2, p. 32-52., 86:32–52.
- MARQUIS, G., DARNET, M., SAILHAC, P., SINGH, A. K. et GERARD, A. (2002). Surface electric variations induced by deep hydraulic stimulation : an example from the Soultz HDR site. *Geophysical Research Letters*, 29.
- MATHERON, G. (1963). Principles of Geostatistics. *Economic Geol.*, 58:1246–1268.
- MAVKO, G., MUKERJI, T. et DVORKIN, J. (1998). *The Rock Physics Handbook. Tools for Seismic Analysis in Porous Media*. Cambridge University Press.
- MOORE, J. R., GLASER, S. D., MORRISON, H. F. et HOVERSTEN, G. M. (2004). The streaming potential of liquid carbon dioxide in Berea sandstone. *Geophysical Research Letters*, 31: 17610–+.

- MYER, L. (2001). Laboratory measurement of geophysical properties for monitoring of CO_2 sequestration. http://www.netl.doe.gov/publications/proceedings/01/carbon_seq/6a4.pdf. Proceedings of First National conference on Carbon Sequestration.
- MÉNEZ, B., DUPRAZ, S., GÉRARD, E., GUYOT, F., ROMMEVAUX-JESTIN, C., LIBERT, M., JULLIEN, M., MICHEL, C., DELORME, F., BATAGLIA-BRUNET, F., IGNATIADIS, I., GARCIA, B., BLANCHET, D., HUC, A. Y., HAESELER, F., OGER, P., DROMART, G., OLLIVIER, B. et MAGOT, M. (2007). Impact of the deep biosphere on CO_2 storage performance. *Geotechnicien // Science Report*, 9:150–163.
- NAUDET, V. et REVIL, A. (2005). A sandbox experiment to investigate bacteria-mediated redox processes on self-potential signals. *Geophysical Research Letters*, 32:11405–+.
- NAUDET, V., REVIL, A., BOTTERO, J.-Y. et BÉGASSAT, P. (2003). Relationship between self-potential (SP) signals and redox conditions in contaminated groundwater. *Geophysical Research Letters*, 30:2–1.
- NAUDET, V., REVIL, A., RIZZO, E., BOTTERO, J.-Y. et BÉGASSAT, P. (2004). Groundwater redox conditions and conductivity in a contaminant plume from geoelectrical investigations. *Hydrology and Earth System Sciences*, 8:8–22.
- NOIRIEL, C. (2005). *Contribution à la détermination expérimentale et à la modélisation des différents processus contrôlant l'évolution géochimique, structurale et hydrodynamique des roches fissurées carbonatées*. Thèse de doctorat, École des Mines de Paris.
- NOURBEHECHT, B. (1963). *Irreversible thermodynamic effects in inhomogeneous media and their applications in certain geoelectric problems*. Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Ma.
- NOWROOZI, A. A., HORROCKS, S. et HENDERSON, P. (1999). Saltwater intrusion into the freshwater aquifer in the eastern shore of Virginia : a reconnaissance electrical resistivity survey. *Journal of Applied Geophysics*, 42:1–22.
- OLSEN, P. A., BINLEY, A., HENRY-POULTER, S. et TYCH, W. (1999). Characterizing solute transport in undisturbed soil cores using electrical and X-ray tomographic methods. *Hydrological Processes*, 13:211–221.
- PACALA, S. et SOCOLOW, R. (2004). Stabilization Wedges : Solving the Climate Problem for the Next 50 Years with Current Technologies. *Science*, 305:968–972.
- PANT, S. R. (2007). Personal communication.
- PARASNIS, D. S. (1997). *Principles of Applied Geophysics*. Chapman & Hall.
- PERRIER, F., RICHON, P., RAJAURE, S., FRANCE-LANORD, C., BYRDINA, S., BUREAU, S., GAUTAM, U., KOIRALA, B., SHRESTHA, P., TIWARI, D. R., BOLLINGER, L., REVIL, A., CONTRAIRES, S. et SAPKOTA, S. (2009). A direct evidence for high carbon dioxide and radon-222 discharge in central nepal. *EPSL*, 78:198–207.
- PERRIER, F., TRIQUE, M., LORNE, B., AVOUAC, J.-P., HAUTOT, S. et TARITS, P. (1998). Electric potential variations associated with yearly lake level variations. *Geophysical Research Letters*, 25:1955–1958.
- PERRIN, M. (2007). *microscopie electronique à balayage et microanalyse*. http://www.cmeba.univ-rennes1.fr/Principe_MEB.html.

- PERROT, R. et VION, M. *Caractérisation expérimentale de la porosité et de la perméabilité des sols. Rapport de Projet de Laboratoire.*
- PESSEL, M. (2001). Tomographie Électrique : Développements Méthodologiques et Applications. *Thèse de doctorat, Université Rennes I.*
- PESSEL, M. et GIBERT, D. (2003). *Multiscale electrical impedance tomography.* Journal of Geophysical Research (Solid Earth), pages 5–1.
- PETIAU, G. (2000). *Second Generation of Lead-lead Chloride Electrodes for Geophysical Applications.* Pure and Applied Geophysics, 157:357–382.
- PETIAU, G. et DUPIS, A. (1980). *Noise, Temperature Coefficient, and Long-Time Stability of Electrodes for Telluric Observations.* Geophysical Prospecting, 28:792–804.
- PIDLISECKY, A., HABER, E. et KNIGHT, R. (2007). *RESINVM3D : A 3D resistivity inversion package.* Geophysics, (72).
- PRUESS, K., XU, T., APPS, J. et GARCIA, J. (2003). *Numerical modeling of aquifer disposal of CO₂.* SPE Journal, 8:49–60.
- RASOLOFOSAON, P. et ZINSZNER, B. (2002). *Vérification expérimentale de la formule de Gassmann dans les calcaires poreux.* Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, 57:129–138.
- RASOLOFOSAON, P. et ZINSZNER, B. (2003). *Petroacoustic Characterization of Reservoir Rocks for Seismic Monitoring Studies.* Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, 58:615–635.
- RAYMER, L., HUNT, E. et GARDNER, J. (1980). *Improved sonic transit time-to-porosity transform.* Twenty-first Annual Logging Symposium Transactions, Lafayette, Louisiana.
- RAYNAUD, M. (1863). *Les médecins au temps de Molière. Mœurs, institutions, doctrines.* Didier et Cie. Libraires éditeurs.
- RENARD, F., GRATIER, J.-P., ORTOLEVA, P., BROSE, E. et BAZIN, B. (1998). *Self-organization during reactive fluid flow in a porous medium.* Geophysical Research Letters, 25:385–388.
- RENARD, F., GUNDERSEN, E., HELLMANN, R., COLLOMBET, M. et LE GUEN, Y. (2005). *Numerical Modeling of the Effect of Carbon Dioxide Sequestration on the Rate of Pressure Solution Creep in Limestone : Preliminary Results.* Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, 60:381–399.
- REVIL, A. (1999). *Ionic diffusivity, electrical conductivity, membrane and thermoelectric potentials in colloids and granular porous media : A unified model.* Journal of Colloid and Interface Science, 212:503–522.
- REVIL, A. et GLOVER, P. W. J. (1997). *Theory of ionic-surface electrical conduction in porous media.* Physical Review B, 55:1757–1773.
- REVIL, A. et GLOVER, P. W. J. (1998). *Nature of surface electrical conductivity in natural sands, sandstones, and clays.* Geophysical Research Letters, 25:691–694.
- REVIL, A., NAUDET, V. et MEUNIER, J. D. (2004). *The hydroelectric problem of porous rocks : inversion of the position of the water table from self-potential data.* Geophysical Journal International, 159:435–444.
- REVIL, A., NAUDET, V., NOUZARET, J. et PESSEL, M. (2003). *Principles of electrography*

- applied to self-potential electrokinetic sources and hydrogeological applications*. Water Resources Research, 39:3–1.
- REVIL, A., PEZARD, P. A. et GLOVER, P. W. J. (1999a). *Streaming potential in porous media 1. Theory of the zeta potential*. Journal of Geophysical Research, 104:20021–20032.
- REVIL, A., SCHWAEGER, H., CATHLES, L. M. et MANHARDT, P. D. (1999b). *Streaming potential in porous media 2. Theory and application to geothermal systems*. Journal of Geophysical Research, 104:20033–20048.
- ROUSSEAU, F. (2003). Méthodes d'analyse d'images et de calibration pour l'échographie 3D en mode main-libre. *Thèse de doctorat, Université Rennes I*.
- SAMOUËLIAN, A., COUSIN, I., TABBAGH, A., BRUAND, A. et RICHARD, G. (2005). *Electrical resistivity survey in soil science : a review*. Soil & Tillage Research, 83:173–193.
- SATO, M. et MOONEY, H. (1960). *The electrochemical mechanism of sulfide self-potentials*. Geophysics, 25:226.
- SIMMONS, G. et WANG, H. (1965). Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties. *Southern Methodist University Dallas*.
- SINGURINDY, O. et BERKOWITZ, B. (2003). *Evolution of hydraulic conductivity by precipitation and dissolution in carbonate rock*. Water Resources Research, 39:8–1.
- SINGURINDY, O. et BERKOWITZ, B. (2005). *The role of fractures on coupled dissolution and precipitation patterns in carbonate rocks*. Advances in Water Resources, 28:507–521.
- SLATER, L., BINLEY, A., DAILY, W. et JOHNSON, R. (2000). *Cross-hole electrical imaging of a controlled saline tracer injection*. Journal of Applied Geophysics, 44:85–102.
- SMOLUCHOWSKI, M. v. (1903). *Krak. Anz.*, 182.
- SOLOMON, S., QIN, D., MANNING, M., ALLEY, R., BERNTSEN, T., BINDOFF, N., CHEN, Z., CHIDTHAISONG, A., GREGORY, J., HEGERL, G., HEIMANN, M., HEWITSON, B., HOSKINS, B., JOOS, F., JOUZEL, J., KATTISOV, V., LOHMANN, U., MATSUNO, T., MOLINA, M., NICHOLLS, N., OVERPECK, J., RAGA, G., RAMASWAMY, V., REN, J., RUSTICUCCI, M., SOMERVILLE, R., STOCKER, T., WHETTON, P., WOOD, R. et WRATT, D. (2007). *Technical Summary*. In : *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. <http://www.ipcc.ch/ipccreports/ar4-wg1.htm>. [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)] Cambridge University Press.
- TELFORD, W., GELDART, L., SHERIFF, R. et KEYS, D. (1976). *Applied Geophysics*. Cambridge University Press.
- THOMPSON, D. et POWNALL, P. (1989). *Surface electrical properties of calcite*. Journal of Colloid and Interface Science, 131:74–82.
- TOKSÖZ, M. N., JOHNSTON, D. et TIMUR, A. (1979). *Attenuation of seismic waves in dry and saturated rocks : I. Laboratory Measurements*. Geophysics, 44:681–690.
- VIALLE, S. (2008). Étude expérimentale des effets de la dissolution (ou de la précipitation) de minéraux sur la perméabilité des roches. *Thèse de doctorat, Institut de Physique du Globe de Paris*.
- WARD, S. H. (1990). Geotechnical and environmental geophysics ; n°5. Volume 1 : Review and tutorial. *Society of Exploration Geophysicists*.

-
- WEI, H. F., LEDOUX, E. et DE MARSILY, G. (1990). *Regional modelling of groundwater flow and salt and environmental tracer transport in deep aquifers in the Paris Basin*. Journal of Hydrology, 120.
- WINTER, E. M. et BERGMAN, P. D. (1993). *Availability of depleted oil and gas reservoirs for disposal of carbon dioxide in the United States*. Energy Conversion and Management, 34:1177-1187.
- WYLLIE, M. R. J., GREGORY, A. R. et GARDNER, L. W. (1956). *Elastic wave velocities in heterogeneous and porous media*. Geophysics, (49):1850-1860.
- XU, T., APPS, J. A. et PRUESS, K. (2003). *Reactive geochemical transport simulation to study mineral trapping for CO₂ disposal in deep arenaceous formations*. Journal of Geophysical Research (Solid Earth), 108:2071-+.
- YARAMANCI, U. (2000). *Goelectric exploration and monitoring in rock salt for the safety assessment of underground waste disposal sites*. Journal of Applied Geophysics, 44:181-196.
- ZAMORA, M., SARTORIS, G. et CHELINI, W. (1994). *Laboratory measurements of ultrasonic wave velocities in rocks from the Campi Flegrei volcanic system and their relation to other field data*. Journal of Geophysical Research, 99:13553-13561.

Table des figures

1.1	<i>Température globale annuelle moyenne observée (points noirs). En ordonnée, à gauche, l'anomalie relative à la moyenne établie sur les années 1961 à 1990, et à droite la température estimée en °C. Lois linéaires d'évolution de la température en fonction du temps pour des périodes de 25 (en jaune), 50 (en orange), 100 (en violet), et 150 ans (en rouge). En bleu on peut voir les données lissées de température. En bleu clair avec l'estimation de l'erreur sur ces données. (Solomon et al., 2007)</i>	9
1.2	<i>Options majoritairement envisagées pour le stockage géologique du CO₂.</i>	10
1.3	<i>Ce graphique représente la sécurité d'un stockage de CO₂. On y voit qu'un piégeage minéral serait la garantie d'une séquestration réussie quel que soit le milieu choisi.</i>	11
2.1	<i>Effet de la dissolution et de la précipitation sur l'espace poral.</i>	15
3.1	<i>Schéma de fonctionnement du perméamètre macroscopique (d'après Clavaud 2001).</i>	21
3.2	<i>Schéma détaillé de la cellule maintenant l'échantillon en place pendant les expériences. L'éprouvette est couverte de résine sur l'ensemble de sa longueur et est maintenue au contact de deux électrodes en inox permettant de mesurer sa conductivité électrique. Ce dispositif est celui utilisé sur le macroperméamètre et sur le montage de percolation réactive.</i>	22
3.3	<i>Débit d'air en fonction du produit de la pression moyenne dans l'échantillon M1 par le gradient de pression aux extrémités de celui-ci.</i>	23
3.4	<i>Ces schémas représentent l'avancée d'un front plus conducteur (saumure) dans un échantillon saturé d'eau. En étudiant la courbe de la conductivité en fonction du volume de saumure injecté, on peut repérer le seuil de percolation électrique (ou de percée), lorsque le premier chemin atteint l'extrémité de l'échantillon.</i>	25
3.5	<i>Différence d'avancée d'un front d'eau salée dans deux échantillons d'hétérogénéité différente saturés d'eau douce.</i>	25
3.6	<i>Dispositif de mesure des ondes P et S. (Ici débranché.)</i>	27
3.7	<i>Schéma de montage du dispositif d'injection de fluides en échantillons décimétriques.</i>	29
3.8	<i>Photographie du dispositif d'injection de fluides en échantillons décimétriques et de suivi multi-paramètres.</i>	30
3.9	<i>Chronologie des expériences d'injection de fluide dans les échantillons de calcaire des Estailades (S7) (en haut) et de Saint-Maximin (M1) (en bas). La lettre S correspond à une injection de solution salée, la lettre D à une injection d'eau distillée, et la lettre C à un enrichissement du fluide en CO₂, à pCO₂ = 1 atm.</i>	30

4.1	<i>Caractéristiques des échantillons de calcaire des Estailades (S7) et de Saint Maximin (M1). Lames minces saturées de résine colorée, et distributions des rayons d'accès aux pores obtenues par porosimétrie par injection de mercure.</i>	35
4.2	<i>Profils d'atténuation des rayons X (densité radiologique) obtenus par tomodesintométrie, et profils de vitesse des ondes P et S mesurés par transmission de pulse et pointé d'impétus avant expérience. Échantillons à l'état sec.</i>	36
4.3	<i>Déplacements miscibles des deux échantillons de calcaire des Estailades (S7) et de Saint-Maximin (M1) avant expérience.</i>	37
4.4	<i>a) Évolution, en fonction du temps, de l'alcalinité du fluide (cercles blanc), de sa concentration en ions Ca^{2+} (cercles noirs et pointillés), de son pH (carré blancs) et de sa conductivité électrique (losanges) en sortie de l'échantillon de calcaire des Estailades (S7) pendant les périodes SC3 et DC3. b) Évolution en fonction du temps de la perméabilité (en noir) et du facteur de formation électrique (en gris) de S7 pendant ces mêmes périodes. La conductivité électrique du fluide de sortie (losanges) varie au jour 17, le fluide injecté initialement enrichi de $10^{-2} \text{ mol.l}^{-1}$ de NaCl et saturé en CO_2 étant substitué par de l'eau distillée saturée en CO_2.</i>	39
4.5	<i>a) Évolution de l'alcalinité, de la concentration en ions calcium, du pH et de la conductivité électrique de la solution à la sortie de l'échantillon au cours du temps pendant l'injection d'eau saturée en CO_2 (SC2) dans l'échantillon de calcaire de St-Maximin (M1). b) Évolution de la perméabilité et du facteur de formation électrique pendant l'injection (SC2) de CO_2 dans l'échantillon M1.</i>	42
4.6	<i>a) Évolution de l'alcalinité, de la concentration en ions calcium, du pH et de la conductivité électrique de la solution à la sortie de l'échantillon au cours du temps pendant l'injection d'eau saturée en CO_2 (SC3) dans l'échantillon de calcaire de St-Maximin (M1). Le jour 42 correspond au début de l'injection de CO_2. b) Évolution de la perméabilité et du facteur de formation électrique pendant l'injection (SC3) de CO_2 dans l'échantillon M1.</i>	43
4.7	<i>Onde S transmise à travers l'échantillon de calcaire des Estailades pour une même position à deux dates différentes, avant (trait plein) et pendant (pointillés) l'injection SC3 d'eau saturée en CO_2.</i>	47
4.8	<i>Vitesse des ondes P le long de l'échantillon de calcaire des Estailades pour différents jours : le jour 75, le jour 90, et le jour 110.</i>	49
4.9	<i>Porosité le long de l'échantillon de calcaire des Estailades à différents jours : le jour 75, le jour 90, et le jour 110.</i>	50
4.10	<i>Modification apportée à la porosité du calcaire des Estailades au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2, en tout point de l'échantillon. Après quinze jours d'expérience (trait noir), et après un mois (trait pointillé). Entre le jour 90 et le jour 75 (en trait noir), et entre le jour 110 et le jour 75 (en pointillés).</i>	51
4.11	<i>Vitesse des ondes P le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.</i>	52
4.12	<i>Porosité calculée par la formule de Wyllie le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.</i>	53

4.13	<i>Modification apportée à la porosité (Wyllie) du calcaire de St-Maximin au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2, en tout point de l'échantillon. Entre le jour 36 et le jour 18 (en noir), entre le jour 43 et le jour 18 (en pointillés réguliers), et entre le jour 49 et le jour 18 (en pointillés irréguliers).</i>	54
4.14	<i>Porosité calculée par la formule de Raymer le long de l'échantillon de calcaire de St-Maximin pour différentes dates.</i>	55
4.15	<i>Modification apportée à la porosité (Raymer) du calcaire de St-Maximin au cours de l'injection d'eau saturée en CO_2, en tout point de l'échantillon. Entre le jour 36 et le jour 18 (en noir), entre le jour 43 et le jour 18 (en pointillés réguliers), et entre le jour 49 et le jour 18 (en pointillés irréguliers).</i>	56
4.16	<i>Rapports d'amplitude des ondes S pour trois dates au cours d'un mois de réaction. Chacun des trois graphes représente le rapport entre l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise à la date donnée et l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise avant expérience en tout point de l'échantillon des Estaillades.</i>	58
4.17	<i>Rapports d'amplitude des ondes S pour trois dates lors de l'injection SC3. Chacun des trois graphes représente le rapport entre l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise à la date donnée et l'amplitude crête à crête de l'onde S transmise avant expérience (jour 18) en tout point de l'échantillon de Saint-Maximin.</i>	59
4.18	<i>Évolution de la conductivité électrique de l'échantillon de calcaire S7 initialement saturé d'eau distillée, avant (en blanc) et après (en noir) expérience, lors de l'injection de 16 volumes poreux d'eau fortement salée (25 g.l^{-1}). Cette conductivité de la roche est normalisée à la valeur maximale atteinte en fin d'expérience.</i>	62
4.19	<i>Face d'entrée de l'échantillon de calcaire des Estaillades après un mois d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 5ml.min^{-1}. À droite, agrandissement sur une cavité créée.</i>	63
4.20	<i>Face de sortie de l'échantillon de calcaire des Estaillades après un mois d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 5ml.min^{-1}.</i>	64
4.21	<i>Représentation de l'espace poreux créé dans l'échantillon des Estaillades obtenue par tomodesitométrie.</i>	64
4.22	<i>Profil de densité radiologique moyenne de l'échantillon S7 par section le long de l'échantillon avant et après injection de CO_2.</i>	65
4.23	<i>Différence entre les profils de densité radiologique après injection de CO_2 et avant.</i>	66
4.24	<i>Face d'entrée (à gauche) et de sortie (à droite) de l'échantillon de calcaire de Saint-Maximin après une semaine d'injection d'eau saturée en CO_2 à un débit de 10ml.min^{-1}.</i>	67
4.25	<i>Représentation 3D de la porosité créée dans l'échantillon de calcaire de Saint Maximin, obtenue par tomodesitométrie.</i>	67
4.26	<i>Profil de densité radiologique moyenne de l'échantillon M1 par section le long de l'échantillon avant et après injection de CO_2.</i>	68
4.27	<i>Différence entre les profils de densité radiologique de l'échantillon M1 après injection de CO_2 et avant.</i>	69

4.28	<i>Évolution de la porosité au cours des injections de fluide saturé en CO_2 dans l'échantillon de calcaire des Estailades S7. En blanc l'évolution de porosité mesurée in situ grâce aux vitesses des ondes P et la loi de Wyllie. En noir l'évolution de porosité obtenue d'après les profils de tomodynamométrie.</i>	70
4.29	<i>Zone de porosité intergranulaire avant injection. MEB à 15kV en électrons rétro-diffusés (BSE).</i>	72
4.30	<i>Détail de la zone représentée figure 4.29, avec deux zones d'analyse, la 1 (en jaune), ponctuelle, dans le ciment entourant un grain, et la 2 (en bleu), plus étendue, dans le grain.</i>	73
4.31	<i>À gauche, spectre de la zone d'étude 1 de la figure 4.30. À droite, spectre de la zone d'étude 2 de la figure 4.30.</i>	73
4.32	<i>A gauche : Détail d'une cavité dans un grain comportant une auréole de calcite. Étude spectrale d'un profil suivant la flèche jaune. A droite : Pourcentages atomiques correspondant à ce profil.</i>	74
4.33	<i>Deux zones de possible précipitation de calcite. Ciment entre les grains (à gauche), et dans une cavité creusée dans un grain (à droite).</i>	74
4.34	<i>Porosité intergranulaire. Détail : cristal de sparite de $50\mu m$.</i>	75
4.35	<i>Lame témoin de calcaire des Estailades en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).</i>	77
4.36	<i>Lame témoin de calcaire des Estailades en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).</i>	78
4.37	<i>Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).</i>	79
4.38	<i>Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).</i>	80
4.39	<i>Calcaire des Estailades altéré S7 en optique (à gauche) et cathodoluminescence (temps de pose de 10^{-4}) (à droite).</i>	82
5.1	<i>Schéma de fonctionnement d'électrodes impolarisables. (D'après Darnet, 2003.)</i>	89
5.2	<i>Circuit simple expliquant le principe d'un voltmètre à haute impédance d'entrée (Darnet, 2003).</i>	90
5.3	<i>Acquisition d'une pseudo-section de résistivité électrique 2D en géométrie d'acquisition de type Wenner. (Samouëlian et al., 2005)</i>	92
5.4	<i>Modèle réduit de réservoir équipé pour le suivi géoélectrique d'injections en milieu granulaire. Ses dimensions sont de 47cm de diamètre intérieur et de 81cm de haut. Un système permet la circulation d'un fluide.</i>	93
5.5	<i>Une électrode impolarisable $Cu/CuSO_4$ de type "Maineult".</i>	94
5.6	<i>A gauche : électrode "Maineult" en cours de construction. La céramique poreuse est disposée dans la partie évasée du capillaire de pyrex. Au centre : céramique poreuse scellée avec de l'araldite au contact de laquelle vient le fil de cuivre baignant dans l'électrolyte. A droite : partie haute de l'électrode avec la connexion au câble coaxial et le bouchon de paraffine et d'araldite (d'après Maineult 2004).</i>	95
5.7	<i>Vue de la cuve avec les six tiges supportant les électrodes de résistivité électrique.</i>	96

5.8	<i>Vue d'une tige équipée d'électrodes de tomographie en inox. Modèle initial à gauche et modèle amélioré à droite.</i>	97
5.9	<i>Schéma de la situation prise pour illustration d'application de RESINVM3D par les auteurs. (Pidlisecky et al., 2007)</i>	100
5.10	<i>Résultat de démonstration d'inversion avec RESINVM3D (Pidlisecky et al., 2007).</i>	101
5.11	<i>Section du maillage à différentes étapes de son élaboration.</i>	101
5.12	<i>Disposition des électrodes de PS en surface de la cuve.</i>	102
5.13	<i>Schéma de la disposition des électrodes de PS en surface de la cuve. Entre l'électrode 0 et l'électrode 1, l'électrode de référence est enfoncée 20cm en dessous de la surface du sable. Au dessus de l'électrode 18, un point marque la position de la canne d'injection de solution au centre de la cuve.</i>	103
5.14	<i>Différence de potentiel entre les électrodes de PS de surface et l'électrode de référence enfouie à mi-profondeur de la cuve en fonction du temps.</i>	103
5.15	<i>Différence de potentiel entre quelques électrodes de PS de surface et l'électrode de référence enfouie à mi-cuve en fonction du temps. Détail d'une courbe illustrant le niveau de bruit du signal de PS.</i>	105
5.16	<i>Interpolation spatiale du PS en surface de la cuve lors d'une injection d'eau salée dans un sable de Fontainebleau saturé d'eau distillée.</i>	107
5.17	<i>Résistivité électrique inversée en coupe dans la cuve de sable de Fontainebleau saturé d'eau distillée, lors d'une injection d'eau salée. Les tomographies sont faites à trois temps différents : avant l'injection, puis entre deux injections. Les points blancs représentent les électrodes en inox de deux tiges diamétralement opposées.</i>	108
5.18	<i>Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial uniforme (à gauche). Les échelles de couleur représentent la résistivité électrique, en Ohm.m.</i>	109
5.19	<i>Représentation en coupe du cylindre modélisé sur le maillage de la cuve.</i>	110
5.20	<i>Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Après 2 itérations.</i>	111
5.21	<i>Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Après 15 itérations.</i>	112
5.22	<i>Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial à deux résistivités (à gauche) s'approchant de la géométrie du cylindre. Pour cette inversion le modèle initial a été bruité aléatoirement à hauteur de 3%. Après 7 itérations.</i>	113
5.23	<i>Résistivité électrique dans la cuve inversée grâce à RESINVM3D (à droite) à partir d'un modèle initial uniforme (à gauche) de 5 kΩ.m. Après 7 itérations.</i>	114
6.1	<i>Panorama du village de Syabru-Bensi et de la rivière Trisuli. Les sources chaudes se situent sur le même versant Nord, en bas à droite de la photo.</i>	119
6.2	<i>Situation géographique des sources chaudes de Syabru-Bensi.</i>	120
6.3	<i>Carte géologique de la région d'intérêt.</i>	121
6.4	<i>Chambre d'accumulation et capteur de concentration de CO₂ TESTO 535.</i>	122

6.5	<i>Données brutes de concentration en fonction du temps avec leurs ajustements linéaires pour trois points du profil C2. Les pentes obtenues par ces régressions linéaires sont notées sur ce graphique en ppm.j⁻¹</i>	122
6.6	<i>Zone d'étude autour des sources chaudes, notées SBB1-5 comme dans Perrier et al. (soumis), et zones de fort dégagement gazeux avec déposition de sulfates et sulfides (notées 1, 1b, 2). Les lignes rouges indiquent les profils de résistivité électrique (ERTa, ERTb, ERTc) et les lignes bleues les profils de CO₂. L'hexagone noir plein est le point pris pour référence lors des mesures de PS.</i>	123
6.7	<i>Carte du CO₂ interpolé sur le site des sources chaudes de Syabru Bensi. Les triangles permettent de représenter les données de mesure de flux de radon-222 (Rn) sur la même carte.</i>	125
6.8	<i>En haut, flux de CO₂ au sol le long du profil C2 à trois dates différentes. En bas, flux de radon sur le même profil.</i>	126
6.9	<i>Potentiel Spontané dans le voisinage des sources chaudes de Syabru Bensi. Flux local de radon-222 et niveau de flux de CO₂ au sol.</i>	127
6.10	<i>Flux de CO₂ au sol (en bleu) et Potentiel Spontané (en noir) pour les profils C1, P2 et C2.</i>	127
1	<i>À gauche, représentation en coupe de la cuve, au niveau des tiges d'électrodes 1 et 4. À droite, Étape 1 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	155
2	<i>À gauche, Étape 2 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, Étape 3. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	156
3	<i>À gauche, Étape 4 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. À droite, Étape 9. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	157
4	<i>À gauche, Étape 10 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, Étape 11. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	158
5	<i>À gauche, Étape 12 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, Étape 13. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	159
6	<i>À gauche, Étape 14 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, Étape 15. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.</i>	159

7	À gauche, Étape 16 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. À droite, Étape 17 . Dipôles de distance inter-électrodes 45 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	160
8	À gauche, Étape 35 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. À droite, Étape 36 . Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	160
9	À gauche, Étape 37 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, Étape 38 . Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	161
10	À gauche, Étape 43 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. À droite, Étape 44 . Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	161
11	À gauche, Étape 45 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, Étape 46 . Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	162
12	À gauche, Étape 47 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, Étape 48 . Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	162
13	À gauche, Étape 49 de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, Étape 50 . Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	163
14	Étape 51 . Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.	163

Liste des tableaux

3.1	<i>Définition de l'Unité Hounsfield d'atténuation des rayons X</i>	20
4.1	<i>Présentation des échantillons décimétriques utilisés pour les expériences en laboratoire</i>	34
4.2	<i>Évolution de la porosité moyenne calculée à partir de la mesure des ions $[Ca^{2+}]$ dans la solution de sortie, pour les deux échantillons.</i>	41
4.3	<i>Évolution de la porosité calculée par la mesure de l'évolution du facteur de formation électrique pour les deux échantillons, pendant les périodes d'injection de CO_2 SC2 et SC3 dans le cas de l'échantillon S7, et les jours 43 à 49 pour l'échantillon M1.</i>	46
4.4	<i>Évolution de la porosité calculée avec la concentration en Ca^{2+} et à l'aide du facteur de formation pour les deux échantillons de calcaire des Estailades et de Saint-Maximin.</i>	46
4.5	<i>Évolution de la porosité du calcaire de Saint-Maximin soumis à une injection d'eau riche en CO_2 calculée par trois méthodes indépendantes : électrique, sismique, et chimique.</i>	57
4.6	<i>Evolutions de la porosité des deux échantillons calculées par les trois méthodes : chimique, électrique, et sismique. $\delta\phi_{sism}$ est calculé grâce à la formule de Wyllie pour S7 et grâce à celle de Raymer-Hunt-Gardner pour M1 en raison de leurs porosités différentes et de leurs coefficients de cimentation différents.</i>	80

Sixième partie

Annexes

Annexe A

Protocole de mesures pour la tomographie de résistivité électrique (ERT)

Les figures 1 à 14 symbolisent les mesures selon un « panneau » de mesure, soit le plan défini par deux tiges diamétralement opposées, dans le cas des tiges 1 et 4, porteuses de 11 électrodes chacune.

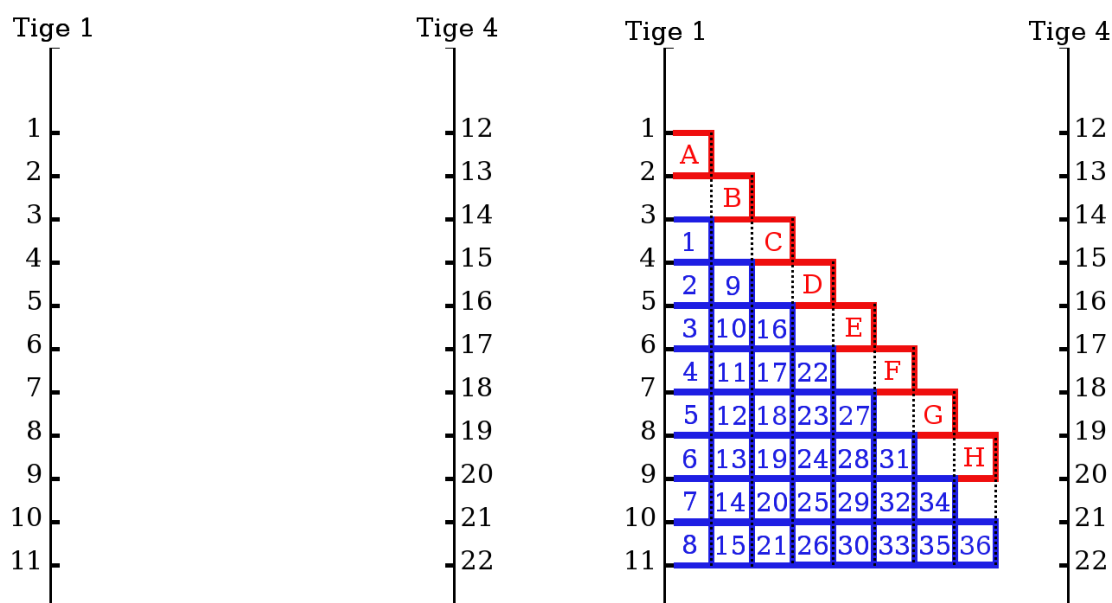


FIGURE 1 – À gauche, représentation en coupe de la cuve, au niveau des tiges d'électrodes 1 et 4. À droite, **Étape 1** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

Lors d'une acquisition, les premières mesures se font entre des dipôles d'injection de courant et de mesure de potentiel de 5 cm d'écartement inter-électrodes. On injecte d'abord le courant en la position A (cf. figure 1), et on balaye les positions de mesure 1 à 8 sur la même tige en respectant l'écartement de 5cm. Un fois la position la plus lointaine atteinte (8), on déplace le dipôle d'injection en position B, et on procède de même pour les mesures de potentiel 9 à 15. Ainsi de suite jusqu'à la mesure 36.

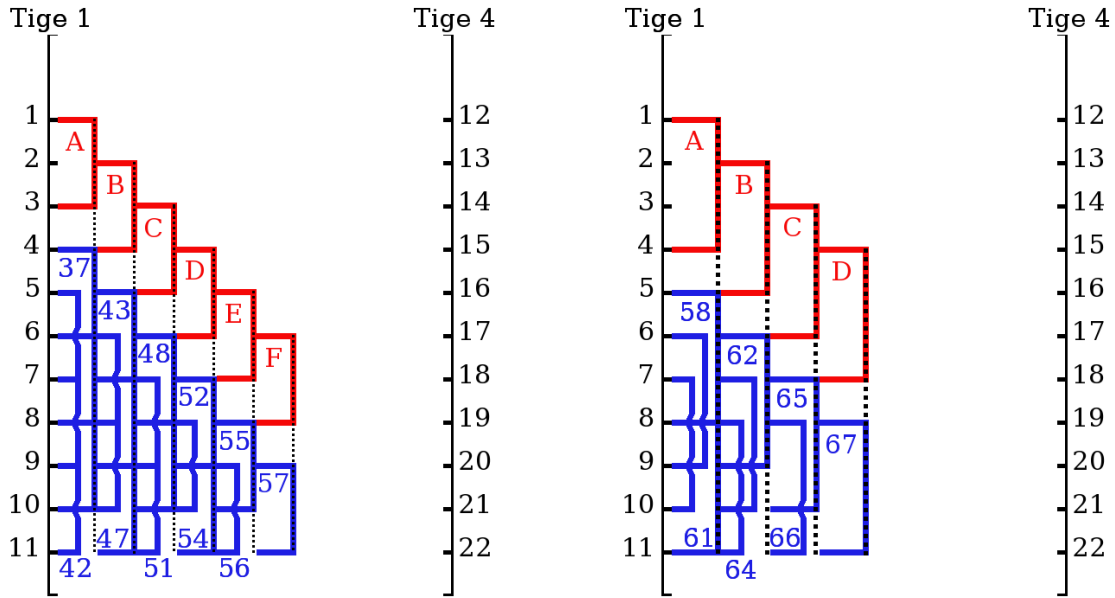


FIGURE 2 – À gauche, **Étape 2** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, **Étape 3**. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

La figure 2 illustre les mesures suivantes effectuées le long de la première tige toujours, selon le même principe et avec un espacement inter-électrodes croissant. Il est de 10 cm pour les mesures 37 à 57, et de 15 cm pour les mesures 58 à 67. Les mesures 68, 69 et 70 réalisées avec un écart de 20 cm sont schématisées figure 3, à gauche.

On réalise ensuite exactement les mêmes mesures sur la tige opposée, en l'occurrence la tige 4. Les mesures 71 à 140, non représentées ici pour éviter la redondance, sont donc des mesures dipôle-dipôle sur les électrodes 12 à 22, suivant exactement le même principe que pour les mesures 1 à 70. Ceci représente les étapes 5 à 8 du protocole d'injection/mesure.

Après avoir ainsi exploré l'espace autour de chacune de ces deux tiges avec ces mesures, la distance inter-électrode croissante ayant permis d'augmenter progressivement la profondeur de sondage dans la cuve, on procède à des mesures entre les tiges opposées. L'étape 9, représentée figure 3, à droite, consiste donc à nouveau à des mesures dipôle-dipôle d'espacement inter-électrodes de 5 cm, mais avec injection de courant sur une tige, et mesure de potentiel sur l'autre, à l'exception des premières mesures de chaque série, intervenant entre les électrodes 11 et 12, consistant en une mesure de potentiel suivant une « grande diagonale » de la cuve.

Ainsi, en injectant tout d'abord le courant en A, on procède à la mesure diagonale 141, puis aux mesures 142 à 145 sur la tige 4. On déplace ensuite l'injection en B, et on mesure en les mêmes points les différences de potentiel 146 à 150. On suit ce schéma jusqu'à la mesure 165.

Les mesures 166 à 213, effectuées lors des étapes 10, 11, et 12 (cf. figures 4 et 5), suivent le même principe, mais avec un écart inter-électrodes de respectivement 10, 15, et 20 cm.

L'étape 13, représentée à droite de la figure 5, et permettant la mesure des différences de potentiel 214 à 238 est en fait la réciproque de l'étape 9. Les dipôles de mesure deviennent

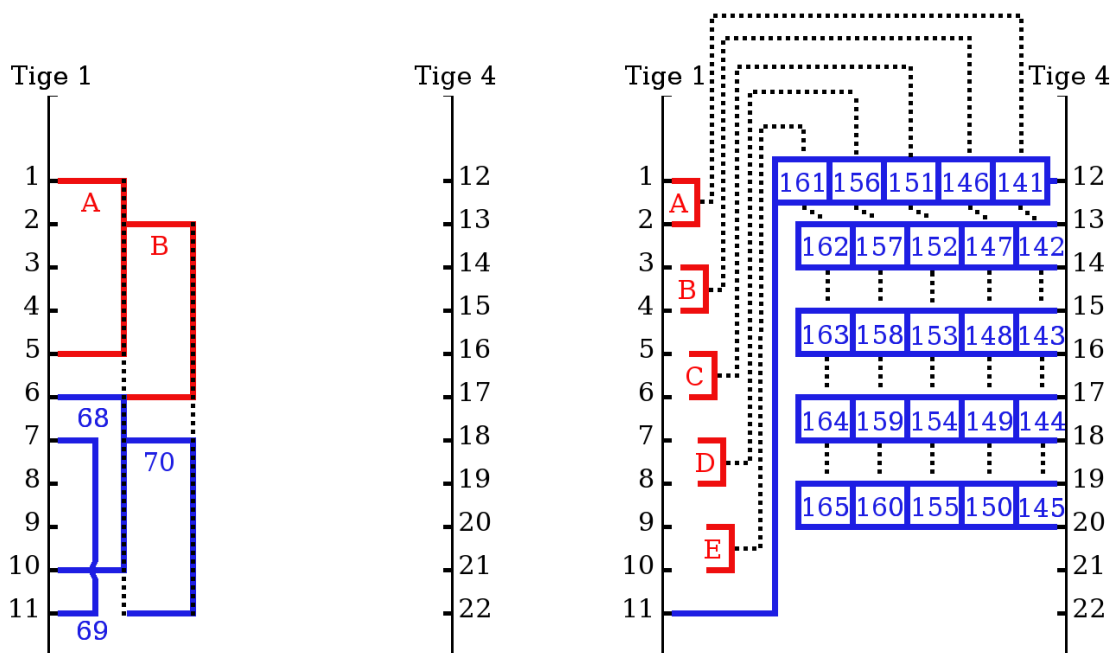


FIGURE 3 – À gauche, **Étape 4** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. À droite, **Étape 9**. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

dipôles d'injection et vice et versa. Ceci permet d'avoir une couverture équivalente et symétrique de la cuve. De même, ainsi, les étapes 14, 15 et 16 sont les réciproques des étapes 10, 11, et 12, et permettent d'obtenir ainsi les données 239 à 286 (cf. figures 6 et 7).

Enfin, l'étape 17 (cf. figure 7) est la dernière marche de l'acquisition entre les tiges 1 et 4. Elle consiste en une série de 45 mesures de différence de potentiel entre des électrodes diamétralement opposées, le potentiel étant conséquence de courants générés entre d'autres couples d'électrodes diamétralement opposées. Ainsi, en injectant un courant traversant la cuve horizontalement, depuis la position la plus haute possible jusqu'à la plus basse, on mesure le potentiel entre les deux tiges tous les 10 cm, avec une distance inter-électrode de 45 cm, soit le diamètre de la cuve, ceci jusqu'à la mesure 331.

Les 330 mesures suivantes sont acquises exactement selon le même schéma, entre les tiges 2 et 5, respectivement porteuses des électrodes 23 à 33 et 34 à 44. Les 17 étapes identiques au protocole présenté jusqu'ici permettent ainsi d'acquérir les différences de potentiel jusqu'à la mesure n°662 entre les 44 électrodes situées sur ces 4 tiges.

Entre les tiges 3 et 6, équipées seulement de 10 électrodes chacune, le protocole est légèrement adapté afin de pallier l'absence du couple d'électrodes inférieur. Ce sont ces nouvelles étapes qui sont détaillées dans les figures 8 à 14

L'étape 35, tout d'abord, est à nouveau une succession de mesures dipôle-dipôle en descendant sur une tige avec un espacement inter-électrode de 5 cm. Ici encore, les distances inter-électrodes augmentent progressivement afin de couvrir l'espace de la cuve jusqu'à l'étape 38 et la cinquantième mesure sur la tige 3.

Les mesures 51 à 100 sont obtenues par les étapes symétriques des étapes 35 à 38, soit les

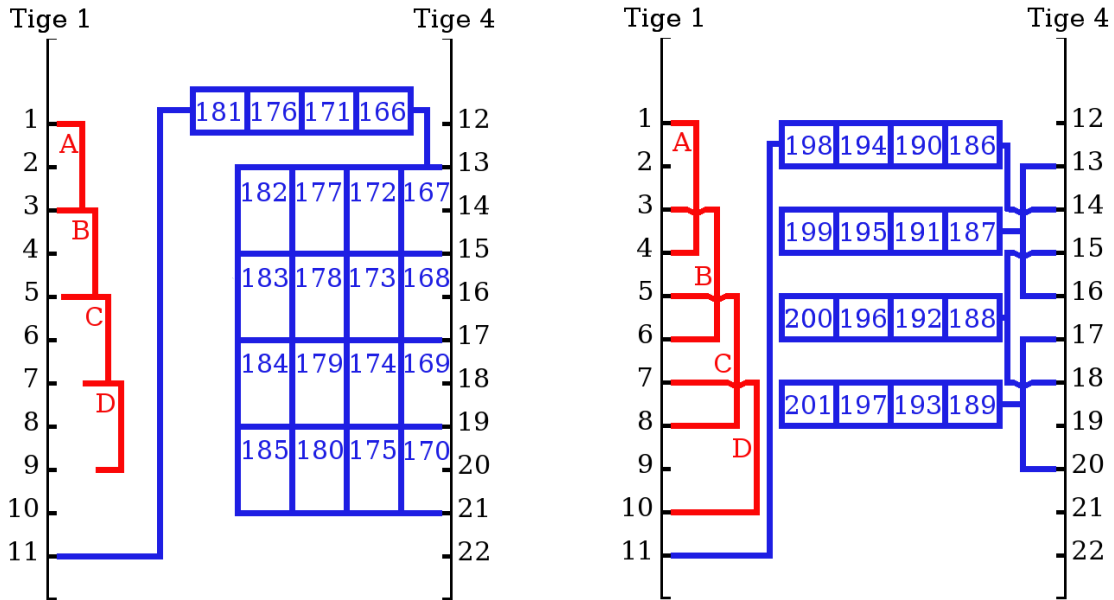


FIGURE 4 – À gauche, **Étape 10** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, **Étape 11**. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

mêmes mesures sur la tige 6, non schématisées.

L'étape 43 (cf. figure 10) correspond aux premières mesures entre les deux tiges, avec une injection de courant par dipôle de 5 cm sur une tige et mesure glissée par dipôle de même dimension sur la tige opposée. Ici encore une mesure diagonale est effectuée également pour chaque position d'injection. On obtient ainsi les mesures de différences de potentiel 101 à 120.

On augmente ensuite progressivement la distance inter-électrodes jusqu'à l'étape 46 et la mesure 157.

Ensuite, les étapes 47 à 50 représentées sur les figures 12 à 13 sont les réciproques de ces étapes 43 à 46.

Enfin, lors de l'étape 51 (cf. 14), un cycle de mesures diamétralement opposées correspondant à l'étape 17 pour les tiges à 11 électrodes est acquis. Il permet d'effectuer les dernières des 254 mesures de ce « panneau » de 20 électrodes.

Ainsi, en cumulant les 331 mesures acquises entre les tiges d'électrodes 1 et 4, les 331 mesures acquises entre les tiges 2 et 5, et les 254 mesures acquises entre les tiges 3 et 6, on a défini l'ensemble des 916 mesures de différence de potentiel permettant cette acquisition de tomographie de résistivité électrique.

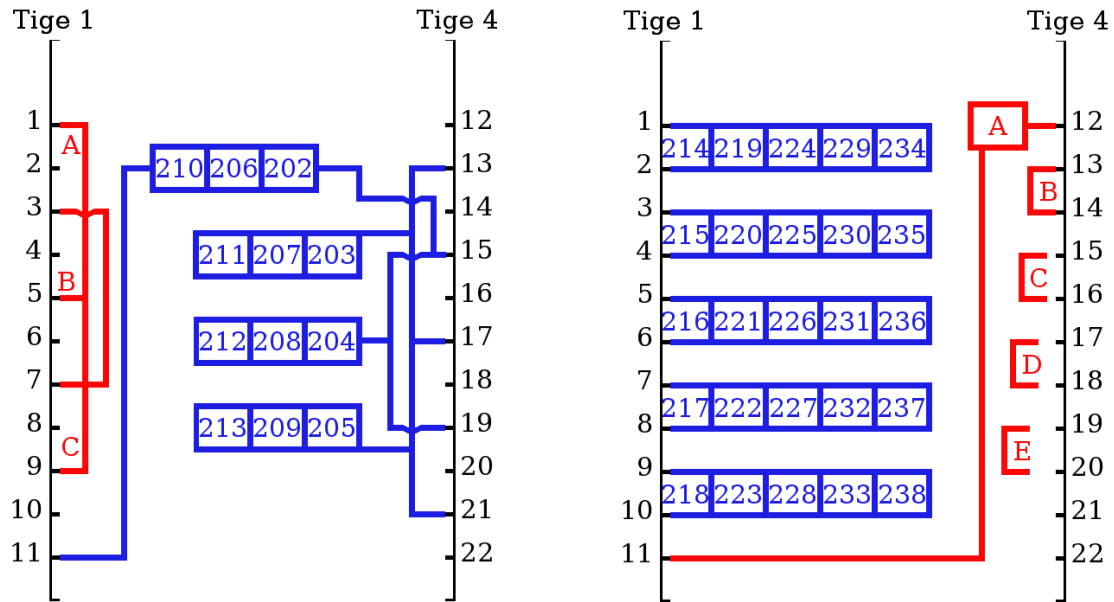


FIGURE 5 – À gauche, **Étape 12** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, **Étape 13**. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

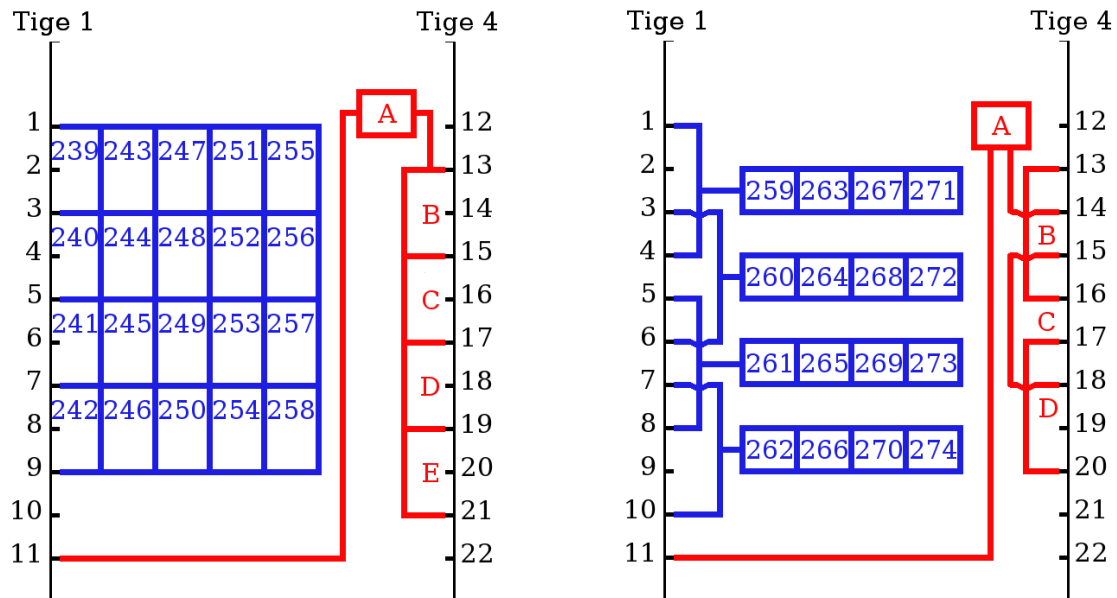


FIGURE 6 – À gauche, **Étape 14** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. À droite, **Étape 15**. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

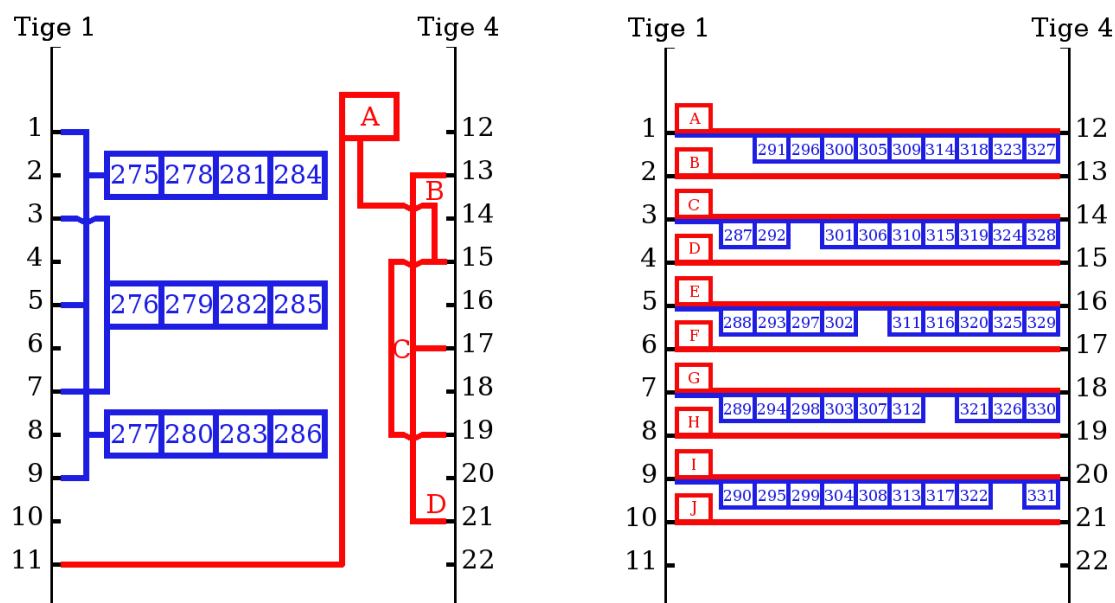


FIGURE 7 – À gauche, **Étape 16** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. À droite, **Étape 17**. Dipôles de distance inter-électrodes 45 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

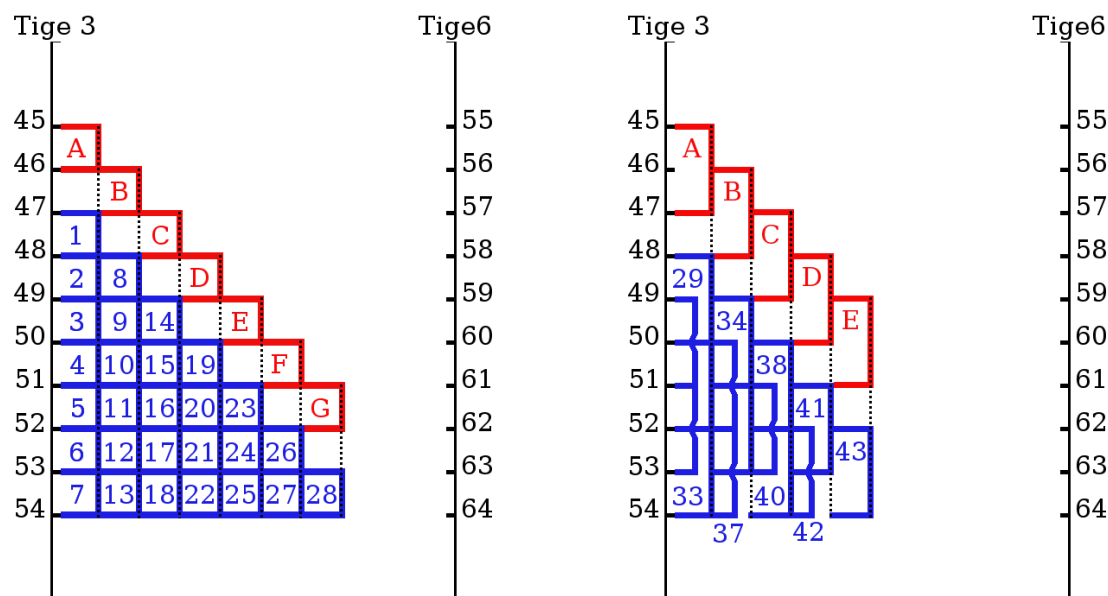


FIGURE 8 – À gauche, **Étape 35** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. À droite, **Étape 36**. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

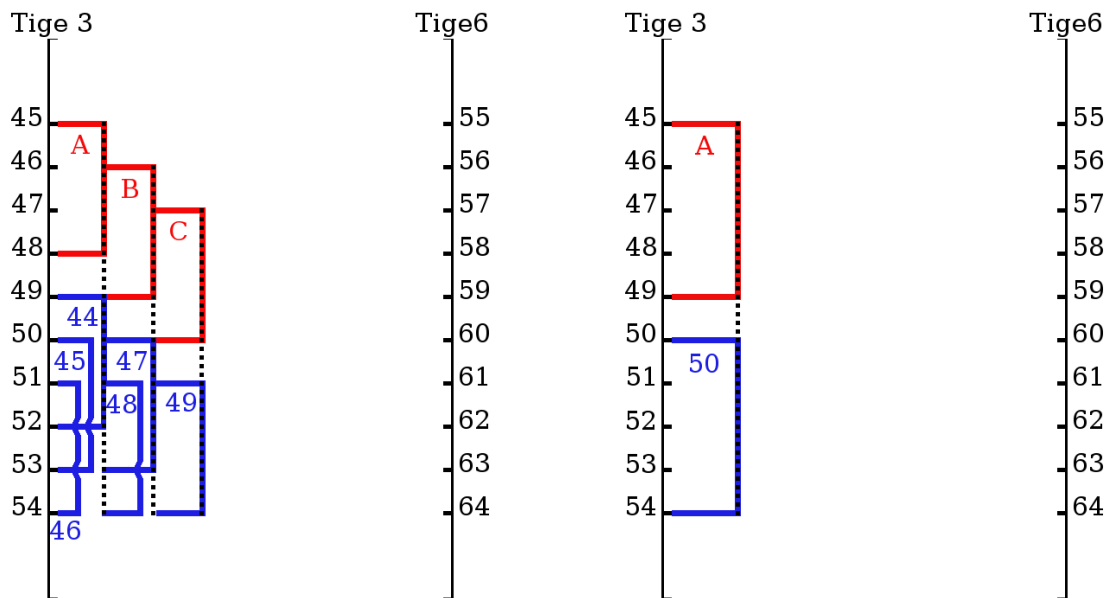


FIGURE 9 – À gauche, **Étape 37** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, **Étape 38**. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

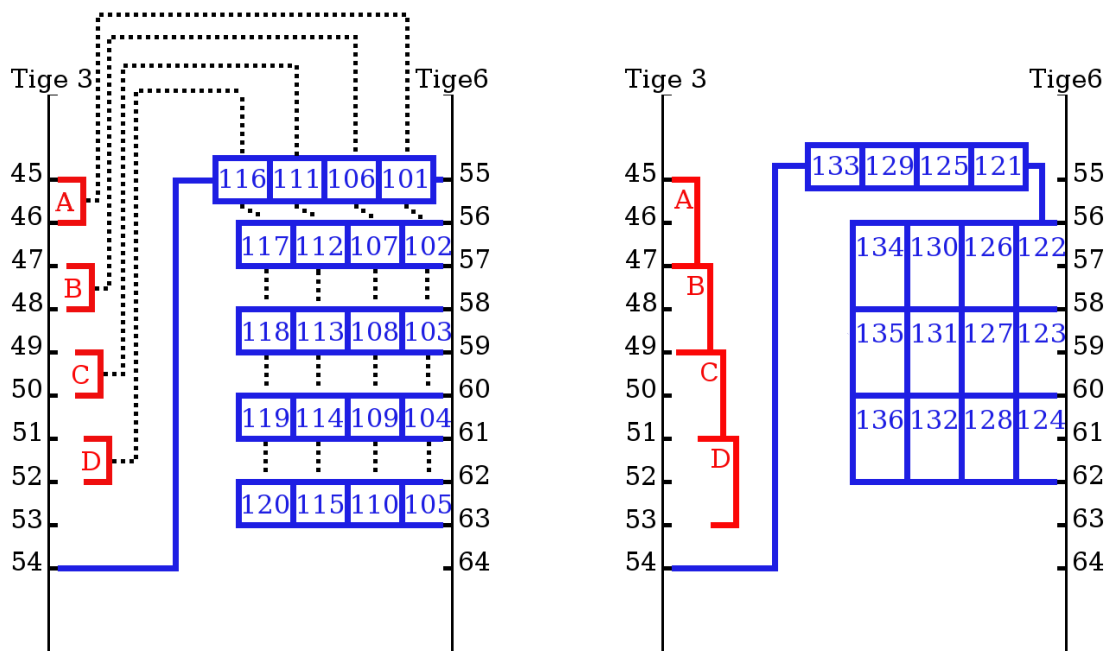


FIGURE 10 – À gauche, **Étape 43** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 5 cm. À droite, **Étape 44**. Dipôles de distance inter-électrodes 10 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

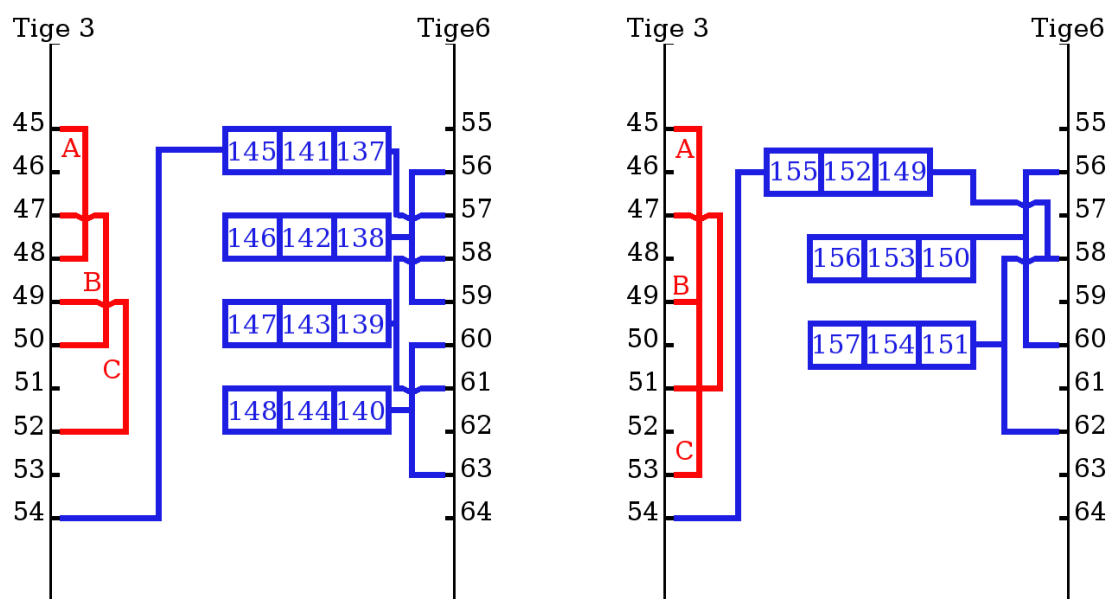


FIGURE 11 – À gauche, **Étape 45** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, **Étape 46**. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

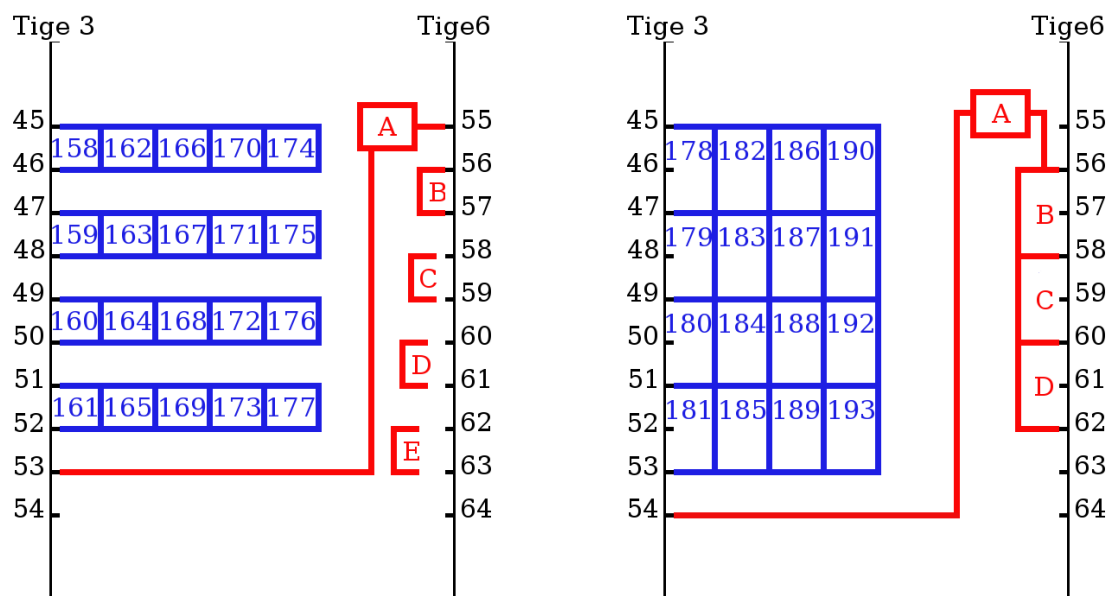


FIGURE 12 – À gauche, **Étape 47** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, **Étape 48**. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

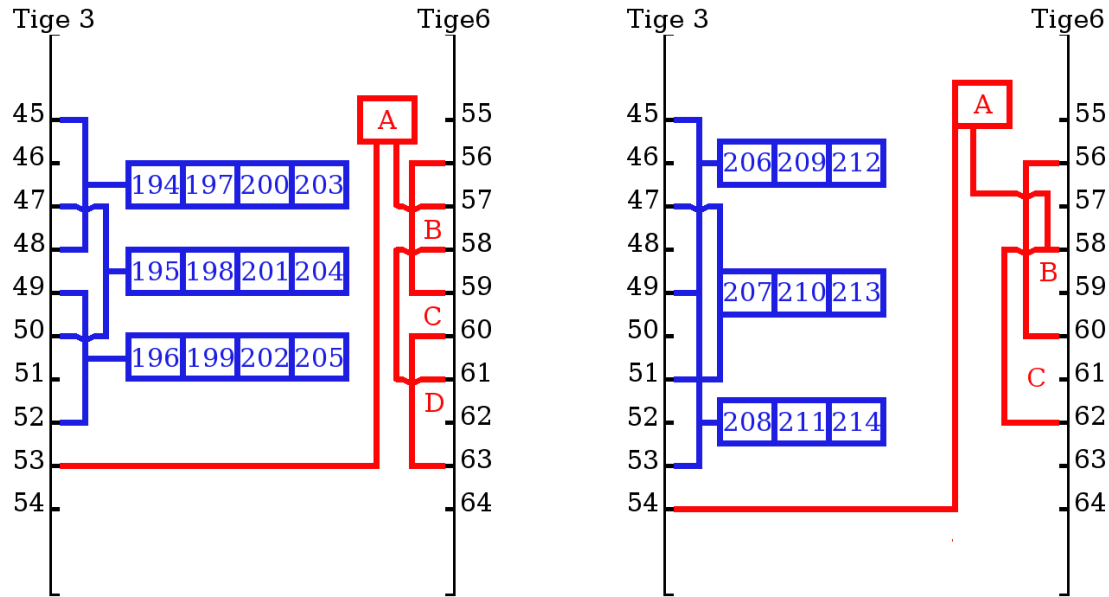


FIGURE 13 – À gauche, **Étape 49** de la mesure automatisée de résistivité électrique dans la cuve. Dipôles de distance inter-électrodes 15 cm. À droite, **Étape 50**. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

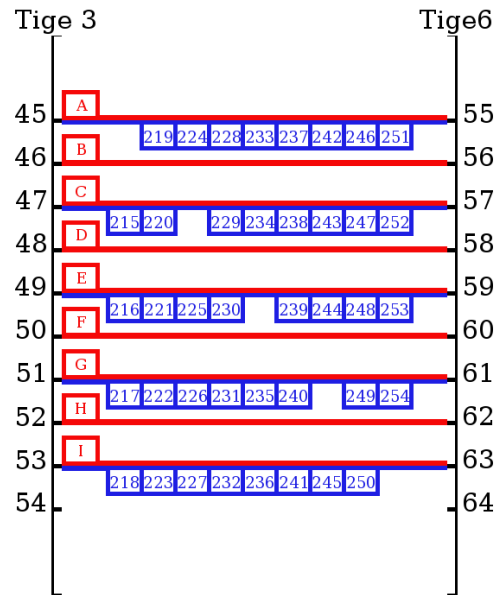


FIGURE 14 – **Étape 51**. Dipôles de distance inter-électrodes 20 cm. L'injection de courant apparaît en rouge, la mesure de potentiel en bleu.

Annexe B

Articles

A direct evidence for high carbon dioxide and radon-222 discharge in Central Nepal

Dipolar self-potential anomaly associated with carbon dioxide and radon exhalation at the Syabru-Bensi hot springs in Central Nepal



A direct evidence for high carbon dioxide and radon-222 discharge in Central Nepal

Frédéric Perrier^{a,*}, Patrick Richon^{b,c}, Svetlana Byrdina^a, Christian France-Lanord^d, Sudhir Rajaure^e, Bharat Prasad Koirala^e, Prithvi Lal Shrestha^e, Umesh Prasad Gautam^e, Dilli Ram Tiwari^e, André Revil^{f,g}, Laurent Bollinger^b, Simon Contraires^h, Sarah Bureau^b, Soma Nath Sapkota^e

^a Equipe de Géomagnétisme, Institut de Physique du Globe de Paris, UMR 7154 et université Paris-Diderot, 4 Place Jussieu, 75005 Paris, France

^b Département Analyse Surveillance Environnement, CEA, DAM, DIF, 91297 Arpajon, France

^c Equipe de Géologie des Systèmes Volcaniques, Institut de Physique du Globe de Paris, UMR7154, 4 Place Jussieu, 75005 Paris, France

^d Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques/CNRS, BP20 54501, Vandoeuvre-les-Nancy, France

^e National Seismic Centre, Department of Mines and Geology, Lainchaur, Kathmandu, Nepal

^f Colorado School of Mines, Department of Geophysics, Golden, CO, United States

^g CNRS-LGIT UMR 5559, Equipe Volcans, Université de Savoie, Chambéry, France

^h Equipe Géomatériaux et Environnement, Institut de Physique du Globe de Paris, UMR 7154, 4 Place Jussieu, 75005 Paris, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 17 September 2008

Received in revised form 29 November 2008

Accepted 2 December 2008

Editor: T.M. Harrison

Keywords:

carbon dioxide
geothermal system
gas flux
thrust fault
active tectonics
carbon budget
radon-222

ABSTRACT

Gas discharges have been identified at the Syabru–Bensi hot springs, located at the front of the High Himalaya in Central Nepal, in the Main Central Thrust zone. The hot spring waters are characterized by a temperature reaching 61 °C, high salinity, high alkalinity and $\delta^{13}\text{C}$ varying from +0.7‰ to +4.8‰. The gas is mainly dry carbon dioxide, with a $\delta^{13}\text{C}$ of −0.8‰. The diffuse carbon dioxide flux, mapped by the accumulation chamber method, reached a value of 19000 g m^{−2}day^{−1}, which is comparable with values measured on active volcanoes. Similar values have been observed over a two-year time interval and the integral around the main gas discharge amounts to 0.25 ± 0.07 mol s^{−1}, or 350 ± 100 ton a^{−1}. The mean radon-222 concentration in spring water did not exceed 2.5 Bq L^{−1}, exponentially decreasing with water temperature. In contrast, in gas bubbles collected in the water or in the dry gas discharges, the radon concentration varied from 16000 to 41000 Bq m^{−3}. In the soil, radon concentration varied from 25000 to more than 50000 Bq m^{−3}. Radon flux, measured at more than fifty points, reached extreme values, larger than 2 Bq m^{−2}s^{−1}, correlated to the larger values of the carbon dioxide flux. Our direct observation confirms previous studies which indicated large degassing in the Himalaya. The proposed understanding is that carbon dioxide is released at mid-crustal depth by metamorphic reactions within the Indian basement, transported along pre-existing faults by meteoric hot water circulation, and degassed before reaching surface. This work, first, confirms that further studies should be undertaken to better constrain the carbon budget of the Himalaya, and, more generally, the contribution of mountain building to the global carbon balance. Furthermore, the evidenced gas discharges provide a unique natural laboratory for methodological studies, and appear particularly important to study as a function of time, especially in relation to the seismic activity. For this purpose, the observed high radon-222 flux is a particularly interesting asset. Indeed, while the relationship between radon and carbon dioxide needs to be better understood, radon measurements, using the available radon sensors, constitute a powerful tool for robust and cost effective long term monitoring.

© 2008 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

One pending problem, in the estimation of the global carbon budget, remains quantifying the contribution of carbon from active orogenic zones such as the Himalayan Range (Galy and France-Lanord, 1999; Quade et al., 2003; France-Lanord et al., 2003). While, over long time scales, carbonate alteration preserves the carbon balance, silicate

alteration behaves as a carbon sink (Gaillardet et al., 1999). In the Himalaya, silicate alteration is important due to the strong monsoonal forcing and the high topography (Evans et al., 2004). However, in regions of active tectonics, carbon dioxide can also be released by metamorphic reactions (Irwin and Barnes, 1980). This contribution is poorly known, but, in the case of the Himalayan Range, appealing clues have been identified in the hot springs located in the High Himalaya, mostly in the vicinity of the Main Central Thrust (MCT) (Evans et al., 2008; Becker et al., 2008; Giggenbach et al., 1983). The hot springs waters have a large alkalinity, up to 100 mmol·kg^{−1}, and

* Corresponding author.

E-mail address: perrier@ipgp.jussieu.fr (F. Perrier).

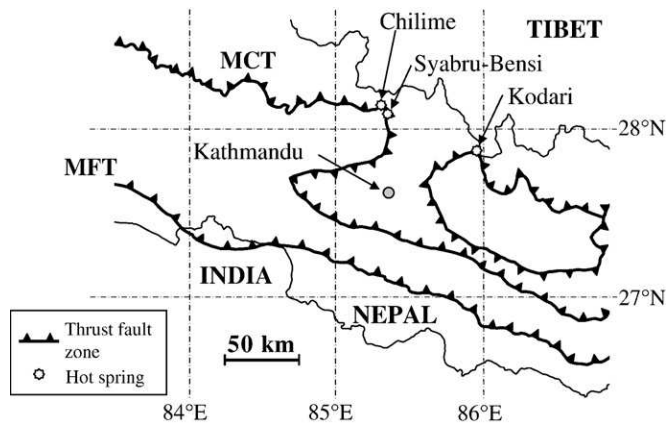


Fig. 1. Simplified map of Nepal showing the location of the Syabru-Bensi, Chilime and Kodari hot springs. The contours of the Main Central Thrust (MCT) and Main Frontal Thrust (MFT) are indicated.

have a $\delta^{13}\text{C}$ ranging up to +13‰. Modelling of this isotopic fraction suggests a large degassing, which may potentially completely override the weathering sink of CO_2 .

A strong source of metamorphic CO_2 opens other interesting possibilities. The upper part of the decarbonation zone at 300–600 °C coincides with a zone of clustered microseismicity located under the front of the High Himalaya at mid-crustal depths (Bollinger et al., 2004, 2006). This cluster, associated with an electrically conductive zone (Lemonnier et al., 1999), appears to be generated at the updip end of the ductile portion of the Main Himalayan Thrust (MHT), the main continental active fault on which the MCT roots (Avouac et al., 2001). The hot springs are located on the surface a few kilometers north of this zone. This suggests a mechanism where carbon dioxide produced by metamorphism is transported to the surface, preferentially along fault networks that are permanently activated by microseismic activity and connected with the hot springs. The metamorphic fluids would mix with meteoric shallow water circulation before reaching surface (Evans et al., 2008; Becker et al., 2008).

Searching for direct gas discharge points in the High Himalaya, thus, has a twofold purpose. First, the large flux estimated from the thermodynamic modelling of the isotopic anomalies suggests that CO_2 release should be observable directly. Second, monitoring such gas discharges as a function of time may constrain the time evolution of the metamorphic source or the transport properties of the mid-crust, which are both possibly modulated by the seismic cycle.

The gas discharge points may also be associated with enhanced radon-222 flux. Radon-222 is a radioactive alpha emitter, with a half-life of 3.8 days, and the decay product of radium-226, a member of the uranium-238 family. It accumulates in the pore space before being transported to the rock or ground surface (Tanner, 1964). High radon concentrations have been observed in volcanic and geothermal areas in the presence of large discharge of carrier gases which can be water vapour or carbon dioxide (e.g., Baubron et al., 1991). Radon has also been used together with other gases (CO_2 , He, CH_4) to survey seismogenic faults (e.g., Ciotoli et al., 1998). Transient radon signals, observed in the vicinity of an artificial lake with varying water level, also suggest that radon measurements may be particularly sensitive to stress changes (Trique et al., 1999). Radon flux measurements, however, remain rare in tectonically active zones. In this paper, we report the results of carbon dioxide and radon flux measurements at the Syabru-Bensi hot springs in Central Nepal.

2. The Syabru-Bensi hot springs in Central Nepal

2.1. The hot springs

The Syabru-Bensi hot springs, like the other important hot springs of Central Nepal (Chilime and Kodari), are located at the foot of the High Himalaya, in the MCT zone (Fig. 1). This thrust fault zone, which has complex geologic and geometric structures (e.g., Upreti, 1999), places Paleoproterozoic to Ordovician rocks of the Great Himalayan Crystalline (GHC) complex over Proterozoic–Cambrian rocks of the Lesser Himalayan Sequence (LHS). The MCT, currently inactive, is considered to branch to the active MHT at depth (Bollinger et al., 2006; Yin, 2006). The Syabru-Bensi and Chilime hot springs are located in the northern part of the Trisuli valley (Fig. 2). These hot springs emerge in a gneiss and schist zone located in the northern part of the

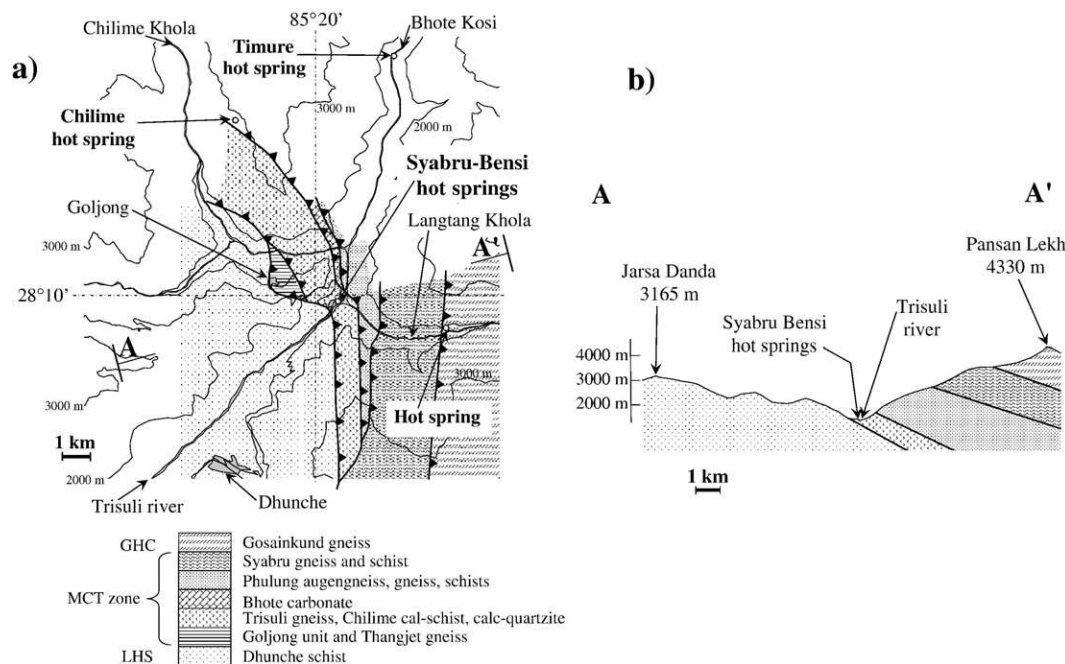


Fig. 2. a) Geological map of the Syabru-Bensi area simplified from Macfarlane et al. (1992) showing the location of studied hot springs and cross section AA'. Topographic contours are taken from the 1:50 000 sheet number 2885 14 (Survey Department of Nepal, revised 1996). b) N40°E geological section of the MCT zone along AA'.

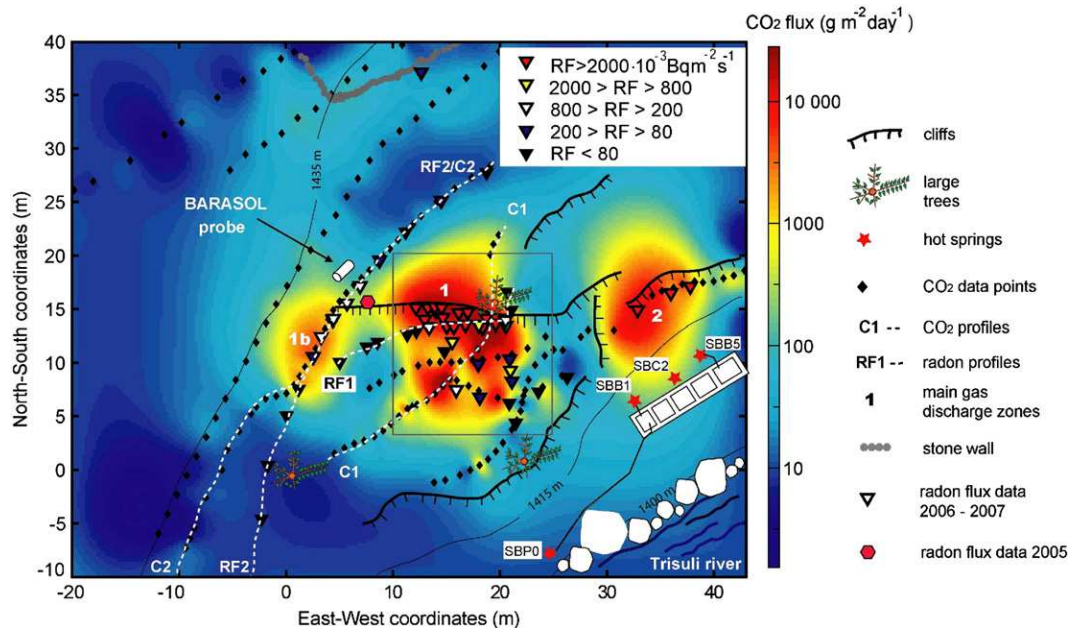


Fig. 3. Sketch of the vicinity of the Syabru–Bensi hot springs showing the main water and gas discharge points. The colour contours display the carbon dioxide flux map, obtained using 2D biharmonic spline interpolation, as implemented in MATLAB™ v4. Locations of the radon-222 flux measurement points are indicated with colour coded triangles for 2006–2007 data and a hexagon for the 2005 measurement.

MCT shear zone. Intercalated carbonate beds are also documented in the vicinity (Macfarlane et al., 1992). Two additional smaller hot springs need to be mentioned: the Timure hot spring to the north and one hot spring near the Langtang Khola to the east (Fig. 2).

The Syabru–Bensi hot springs (28°9′46″N, 85°20′16″E) are located at an altitude of 1405 m asl., at the edge of the Kampathar settlement, below the Syabru–Bensi village on the right bank of the Trisuli river, in a zone of contrasting topography (Fig. 2). Several discharge points occur at the interface between rock substratum and alluvial–colluvial

sediments of the river terrace, 3 to 5 m above the Trisuli river (Fig. 3). The water from the main discharge points (SBP0, SBB1, SBC2 and SBB5 in Fig. 3), with temperatures varying from 33 to 61 °C, is collected in cemented tanks and used by the pilgrims and local villagers. A flow rate of $0.23 \pm 0.02 \text{ L s}^{-1}$ was measured at point SBB5 (Fig. 3) in January 2007, in agreement with flows from 0.01 to 0.34 L s^{-1} reported in 1980 (Kotarba, 1986). In 2007, several additional hot water discharge points were identified within 500 m of the main Syabru–Bensi hot spring, on both sides of the Trisuli river.

Table 1
Main geochemical properties of the main hot springs of Central Nepal

	Temperature (°C)	Conductivity ($\mu\text{S cm}^{-1}$)	pH	TAC measured	TAC Calculated	F ⁻	Cl ⁻	B	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Li ⁺	Fe ²⁺
Syabru–Bensi (28°9′46″/85°20′16″)															
January 2007	35 to 61	1330 to 1960													
January 2005	30 to 56	1340 to 1900													
January 2004	33 to 61	1200 to 1900	6.1 to 7.1	25000	19500	80	949	120	1052	8230	2206	3289	2411	559	30
February 2000	32 to 62	1410 to 1990	6.1 to 7.2												
March 1997 (MLB27) E	54		6.6		19000	91	960	208	939	9835	1951	2899	2347		
Spring 1980 LF	51		7.1		19000	68	1199		906	9135	2302	3044	2304		9
Chilime (28°13′13″/85°17′52″)															
January 2004	50	379	7.0		3300	19	21		332	548	311	595	684	10	263
Spring 1980 K	49		6.4		3500	10	50		312	566	333	631	769		252
October 1975 LF									413	565	333	625	782		
Timure (28°14′32″/85°21′29″)															
December 2006	30 to 39	860 to 1200													
Langtang Khola hot spring (28°9′6″/85°22′21″)															
December 2006	41	575													
March 2001 (MLB 41) E	41		8.6		5060	449	18	92	231	5729	153	90	12		
Kodari (27°57′47″/85°57′27″)															
February 2000		1087													
October 1999	40	877	6.6												
May 1998	44	944													
May to December 1998			6.6		7600		720		1300	5600	550	1300	1100		
March 1991 (NH21) E	46	1071	6.4		8400	159	903	130	906	6316	754	1302	860		

The ion concentrations for Syabru–Bensi and Chilime refer to the hottest discharge point. Our results are compared with values obtained by Evans and coworkers (Evans et al., 2004), by Kotarba from samples collected in 1980 (Kotarba, 1986) and by Le Fort from samples collected in 1975 (Le Fort, 1975), respectively indicated as E, K and LF. Concentrations are expressed in $\mu\text{mol L}^{-1}$. Conductivity and pH are measured on site.

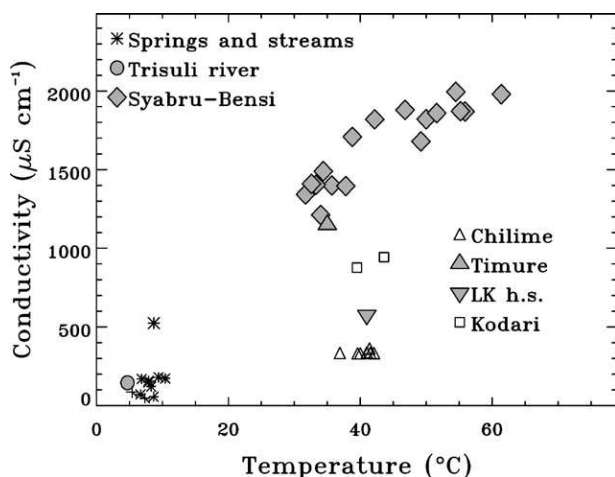


Fig. 4. Conductivity versus temperature for Syabru-Bensi hot springs from 1998 to 2005, Chilime (2000 and 2004) and Kodari (1998 and 1999). The parameters of the Timure hot spring and one hot spring (LK h.s.) located near the bank of the Langtang river are also shown. Data from fresh water springs in the Chilime area (2000) are also given for comparison.

The main geochemical properties of the Syabru-Bensi hot springs were collected in Table 1 and compared with available data from other hot springs of Central Nepal. Anion concentrations were obtained by ion chromatography with uncertainties of 0.5%, and cation concentrations (sodium, potassium, magnesium, calcium) by ICP-OES with uncertainties of about 2%. Total alkalinity (TAC) was determined on site by Gran titration with HCl for the Syabru-Bensi hot spring in 2004. Other values of TAC were inferred from the concentration of other ions assuming electrical neutrality.

Among the various hot springs of Central Nepal, the Syabru-Bensi hot spring has the highest temperature and the largest salinity (Fig. 4). The conductivity of the Syabru-Bensi hot spring water (Fig. 4) is larger than $1200 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$, significantly larger than Kodari (about $940 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$) and Chilime ($330 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$). The hot springs are also characterized by high alkalinity, reaching 19 to $25 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ in Syabru-Bensi. Sodium and potassium (Table 1) comprise a large fraction of the cationic charge (25% for Chilime and 48% for Syabru-Bensi), indicating that high-temperature silicate alteration is the dominant source of alkalinity (Evans et al., 2004). Compared with Chilime, for which these data are also available, the concentration of dissolved iron is lower in Syabru-Bensi. The Chloride ion concentration is significantly smaller in Chilime compared with the other springs. The Langtang Khola hot spring, by contrast, has a low calcium and magnesium content, which might be due to the fact that the Bhote carbonate bed (Fig. 2) is not found on the Langtang side of the valley.

The results obtained in Syabru-Bensi and Chilime in 2004 were also compared in Table 1 with the results obtained in 1997 (Evans et al., 2004), 1980 (Kotarba, 1986) and 1975 (Le Fort, 1975). The concentrations measured at different times by independent teams are remarkably similar. This indicates that the major ion concentrations are stable over long time period and provide an adequate baseline for long-term monitoring and the search for possible anomalous signals.

The $\delta^{13}\text{C}$ of dissolved inorganic carbon was measured on CO_2 released by acidification of an aliquot of water samples with phosphoric acid (Galy and France-Lanord, 1999). The $\delta^{13}\text{C}$ values were then determined using a VG 602D mass spectrometer and are reported relative to PDB (Peedee belemnite), with an uncertainty of $\pm 0.3\%$ (Evans et al., 2008). Water samples were collected in August and September 2007, and the results were collected in Table 2. The $\delta^{13}\text{C}$ values range from 0.7 to $4.8 \pm 0.3\%$, not significantly different from the value 6.4% reported previously for this spring (Evans et al., 2008), and for other hot springs of Nepal (Becker et al., 2008).

2.2. The gas discharges around the Syabru-Bensi hot springs

In Syabru-Bensi, except in the cavity labelled SBC2 (Fig. 3), few gas bubbles were observed at the spring discharge points. In January 2005, for the first time, intense bubbling was observed on the terrace, 10 to 20 m above the main springs (Fig. 3), in the zone labelled as 1b. Gas discharges, with clearly distinguishable whistling sound, occurred at least at three locations (1, 1b, 2 in Fig. 3). The gas vents were associated with thick deposits of sulphur rich soils including gypsum $\text{CaSO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$, epsomite $\text{MgSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$ and alunogen $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3\cdot 17\text{H}_2\text{O}$, which were identified with X-ray analysis. The unpleasant smell of hydrogen sulphide pervaded the whole area. In January 2007, the whole area was dry and the gas bubbling at location 1b (Fig. 3) was not observed. In January 2008, water discharge was again observed from location 1b, with intense gas bubbling.

3. Experimental methods for carbon dioxide and radon measurements

3.1. Carbon dioxide flux measurements

Carbon dioxide flux, commonly referred to as the CO_2 efflux (Chiodini et al., 1998; Evans et al., 2001; Lewicki et al., 2008), was measured using the accumulation chamber method in January 2005 and January 2007. Our goal was to obtain a reasonable estimate of the spatial structure of the gas discharge and of the order of magnitude of the integral flux around the main gas vent. We thus used a simplified methodology, sufficiently adequate for our purpose.

Table 2

Carbon isotopic composition, radon-222 and radium-226 activity concentration in water and composition of gas samples for Syabru-Bensi and Chilime hot springs

	Water phase			Air phase			
	Temperature (°C)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ (‰)	Reference for $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$	Radon in water ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	Radium in water ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	Radon in bubbles ($10^3 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	Manometric CO_2 concentration (%)
Syabru-Bensi							
SBB5	33.35	$+1.0$ to $+4.8 \pm 0.3$	This study	3.0 ± 0.6			
SBC2	36.22				0.23 ± 0.04	25 ± 0.8	
SBP0	61.25	$+0.7$ to $+4.8 \pm 0.3$ $+6.4$	This study Evans et al. (2008)	0.25 ± 0.05	0.23 ± 0.04		
Village spring	15			9.3 ± 1.6	<0.06		
Trisuli river		-7.9 ± 0.3	This study			36 ± 0.9	-0.8 ± 0.3
Gas zone 1						35 ± 0.9 to 41 ± 0.9	73 to 86
Gas zone 1b							
Chilime	39	$+8.3$	Evans et al. (2008)	1.4 ± 0.4	0.41 ± 0.04		

Samples for the measurement of the isotopic composition of water were collected in August and September 2007. The radon-222 concentration measured in the water of a spring located above the Syabru-Bensi village is also given for comparison. Radium concentration was measured in the laboratory by liquid scintillation (Aupiais, 2005) using samples collected in 2004. Errors on the radium concentration correspond to two standard deviations. Radon concentration in water was measured on site in January 2004. Gas samples for carbon isotopic composition and CO_2 concentration were collected in August 2007 in gas zone 1 of Syabru Bensi (Fig. 3).

A single profile (C2 in Fig. 3) was performed in 2005 with an accumulation chamber of 18 Liters volume and a base surface area on the soil of 0.135 m². At the end of December 2006 and in January 2007, we made a more detailed map, comprising more than 300 points (including two profiles C1 and C2), using a 14 L accumulation chamber with a base surface area of 0.11 m².

Before installation of the chamber, the grass was removed and the first five to ten centimetres of soil were scrubbed. The purpose of this scrubbing was to remove the top soil surface, and to prepare a flat homogenous surface to install the accumulation chamber. We also prepared in advance up to a dozen of points and we then carried out the measurements sequentially, in the same order (Lewicki et al., 2005). The effect of scrubbing was studied at selected points and was not found to affect the result by more than 20%.

The chamber was then sealed and air exchange was reduced using plasters of moist soil on the outside of the container around its contact with the soil. The carbon dioxide inside the chamber was measured using a TESTO535 infrared sensor from TESTO AGTM (Germany). This double beam infrared sensor has a range of 0 to 10000 ppm, a resolution of 1 ppm, an accuracy of 100 ppm and a response time of about 20 s. Before the experiment, its calibration was checked in the laboratory and found to be correct within 5%. The sensor was installed in the accumulation chamber, with the display on the outside. The CO₂ concentration in the chamber was recorded manually. Examples of recorded time series are shown in Fig. 5a. These data readily indicated that the fluxes are high. The sensor at some points reached saturation (1%) in less than 30 s.

The carbon dioxide flux F , expressed in g·m⁻²·day⁻¹, was then calculated from the measured rate of concentration increase in the chamber dc/dt , expressed in molar fraction per day, using (Chiodini et al., 1998):

$$F = \frac{V_{\text{acc}} p M}{S_{\text{acc}} R T} \frac{dc}{dt}, \quad (1)$$

where V_{acc} is the container volume (m³), S_{acc} its base surface area (m²), p is the atmospheric pressure (Pa), T the absolute temperature (K), M the molar mass of CO₂ (g) and R the gas constant (J·mol⁻¹·K⁻¹). As the contact with the soil is not air tight, the pressure in the accumulation chamber is the atmospheric pressure.

The measurement uncertainty includes a point to point error (relative error) and a common systematic uncertainty. In this

experiment, we separated the relative uncertainty, which is the only relevant contribution when considering spatial variations, into two contributions. First, the uncertainty on the slope was estimated by changing the data range used to fit the linear increase dc/dt . Second, a reproducibility error was estimated from repeated measurements at the same location, within the same day and from one day to the next. This contribution remained smaller than 15% for most measurements. For flux values larger than 10000 g·m⁻²·day⁻¹ (7 measurements), however, for which saturation was reached within less than 30 s, the variations could be as large as 30 to 50%. Although it is an overestimate for most points, we used a reproducibility error varying from 15% to 30%, which then dominated the relative error. A conservative estimate of the systematic uncertainty is 15%, which is sufficient for our purpose.

3.2. Radon concentration and flux measurements

The radon-222 concentration in gas samples was mainly measured using ZnS Lucas scintillation cells (Lucas, 1957). Each 125 mL flask was first evacuated to a pressure varying from 40 to 90 hPa, then the gas sample was sucked in the flask. After a duration of 3 h, necessary to reach radioactive equilibrium, scintillation from the flask was measured using CALENTM photomultipliers from Algade (France). The radon concentration in Bq·m⁻³ was then obtained from the observed counts. The least count sensitivity is 70 Bq·m⁻³ and the measurement range varies from 0 to several 10⁶ Bq·m⁻³. Additional measurements in soils were performed using a totally different technique: KODALPHATM LR115 cellulose nitrate films. In this case, the films were exposed for about ten days and the radon concentration was calculated after etching and track counting (e.g., Papastefanou, 2002). A third method to measure radon concentration is to use an automated BARASOLTM probe. This sensor is based on alpha detection using a silicon junction (Papastefanou, 2002).

To measure radon-222 concentration in groundwater, radon was degassed by bubbling a 100 mL water sample through a closed circuit for about 30 min (Belloni et al., 1995). An air sample was then transferred in a Lucas cell and the radon-222 concentration activity was measured as described previously. Two or more independent measurements were performed for each water sample. The reliability of this technique was tested in the laboratory. The concentration of radium-226 in groundwater was measured in the laboratory using alpha liquid scintillation (Aupiais, 2005). In this method, a 5 mL aliquot was mixed with an extractive scintillator cocktail, and was then measured in a spectrometer.

The radon flux from the ground was measured using the accumulation chamber method (e.g., Ferry et al., 2001; Richon et al., 2005). In January 2005, a single measurement was performed (see location in Fig. 3) using an accumulation chamber with a volume of 70 L and a base surface area on the soil of 0.283 m². At the beginning of 2007, more than 80 measurements were performed using an accumulation chamber with a volume of 21 L and a base surface area on the soil of 0.16 m². Selected points were repeated in December 2007 and January 2008. In 2005, the radon-222 concentration in the chamber was monitored with a sampling time of 1 h using an automated BARASOLTM sensor. In 2007 and 2008, radon concentration in the accumulation chamber was measured using scintillation flasks.

Examples of time series (accumulation curves) are shown in Fig. 5b. The accumulation curves show that the concentration was varying linearly as a function of time for accumulation times smaller than 20 to 30 min. For most points, therefore, air from the accumulation chamber was sampled 15 to 20 min after the installation of the chamber. The radon flux Φ , expressed in Bq·m⁻²·s⁻¹, is then obtained from the measured radon concentration using:

$$\Phi = \frac{V_{\text{acc}} C_{\text{Rn}}}{S_{\text{acc}} T_{\text{acc}}}, \quad (2)$$

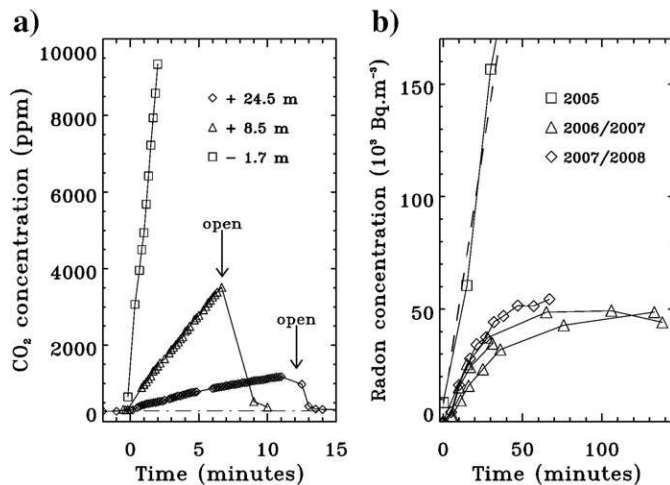


Fig. 5. a) Carbon dioxide concentration versus time in the measuring of 18.4 L accumulation chamber from January 2005 along the C2 profile. Numbers indicate the distance of the measurement point along C2 profile, with origin at intersection with RF2 profile. b) Radon activity concentration versus time in the accumulation chamber from January 2005, December/January 2007, and December 2007/January 2008.

where V_{acc} is the container volume (m^3), S_{acc} its base surface area (m^2), T_{acc} the accumulation time (s), and C_{Rn} the measured radon concentration ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) at time T_{acc} .

This procedure was sufficient in this experiment because of the large concentrations and large fluxes. Counting rates with the photomultipliers were larger than 100 counts in three min for most points, and reached up to values larger than 2000. The point to point (relative) uncertainty is dominated here by the statistical uncertainty on the counting rate, which varied from 20 to 30% for fluxes of the order of $10 \times 10^{-3} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, to less than 5% for fluxes of the order of $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ and larger. When comparing with other experiments, it is also necessary to take into account a systematic uncertainty, of about 5%, due to the absolute calibration of the scintillation flasks.

In a day, given the number of available Lucas flasks for this experiment and the time required to complete one measurement, we could only perform a maximum of 14 measurements. By contrast, one measurement of the CO_2 flux required only about 15 min. The prior knowledge of the position of the gas vents obtained by the much faster CO_2 measurements was therefore extremely important in this experiment. Note also that larger values of the radon flux were measured with a smaller statistical error and time variations in this case could be monitored with high accuracy. By contrast, higher values of the carbon dioxide flux were difficult to measure precisely with our method, because saturation of the CO_2 sensor was reached rapidly. In addition, the CO_2 measurement in such cases was affected by the response time of the sensor. This contrasting resolution of the radon and CO_2 techniques is another strong argument for systematically implementing simultaneous measurements of the carbon dioxide and radon fluxes.

3.3. Gas sampling and analysis

Dry gas was sampled using containers under vacuum connected to a chamber installed over one bubbling vent, and directly from a 40 cm deep rock cavity over the gas vent. Samples were analysed for both molecular composition and carbon isotopic composition of CO_2 . Gas was first purified of water vapour through a trap at -70°C , then a fraction of the remaining gas was analysed on a gas mass spectrometer (GV Isoprime) using electromagnet scanning from mass 2 to 70. This method allows the identification of the various gas species present in the sample. The remaining gas fraction was trapped at -180°C , and the non-condensable phase was moved in a manometer using a Toepler pump to measure its quantity. This fraction is essentially composed of nitrogen and oxygen from air contamination. The remaining fraction trapped at -180°C , essentially composed of CO_2 ,

was then released and quantified in a manometer. The carbon isotopic composition of CO_2 was then measured using a dual inlet VG 602D mass spectrometer.

4. Results

4.1. Results on the carbon dioxide flux

Large soil carbon dioxide fluxes were identified in the vicinity of the main dry gas discharges (Fig. 3) during the preliminary survey in 2005; they were confirmed by the detailed map made in 2007. The CO_2 flux map is displayed in Fig. 3. In addition, two profiles of carbon dioxide flux are shown in Fig. 6. The measurements were performed end of December 2006 and, mostly, beginning of January 2007, during the dry Himalayan season. Rainfall in Syabru–Bensi from October to December 2006 was zero.

Large CO_2 discharge zones, spatially well defined, were observed above the main hot springs. In Fig. 6a, for profile C1 crossing the sulphur and sulphate deposits, the carbon dioxide flux reached values as high as $19000 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$, and the width of the degassing zone was larger than 15 m. In Fig. 6b, for the C2 profile located just above the gas discharges (Fig. 3), the flux reached a maximum value of $4400 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$. The profile exhibits a bell shape with a width at half maximum of about 15 m, as in the case of profile C1. The C2 profile was measured three times: one time in 2005 and two times about two years later, separated by six days. To a first approximation, the three profiles overlap. This indicates that the gas discharge is rather stable with time over a two-year period. The repeatability of the measurements also suggests that the measurement method is sufficiently reliable for our purpose. Note also that some points in profiles C1 and C2 were repeated at different times of the day, with compatible results. Time variability of gas flux, which is an inherent difficulty, did not appear to smear out the spatial structure of the discharges in Syabru–Bensi. Outside the peak, the carbon dioxide flux reached a roughly uniform constant background flux varying between 10 to $25 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$. This value is compatible with usual background values (e.g., Chiodini et al., 1998). In the Kathmandu valley, in October 2006, using the same methodology and the same instruments, the carbon dioxide flux varied from 5 to $20 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$ on a diurnal cycle.

The total carbon dioxide released in the vicinity of the main gas discharge points (gas zone 1 in Fig. 3) could be estimated with reasonable accuracy because more than 70 measurement points were available to constrain the discharge around this point. Changing the spatial extension of the zone used for integration changes the total flux by less than 15%. The total diffusive flux at the ground surface at zone 1, integrated over the area shown in Fig. 3, having a surface area of 240 m^2 ,

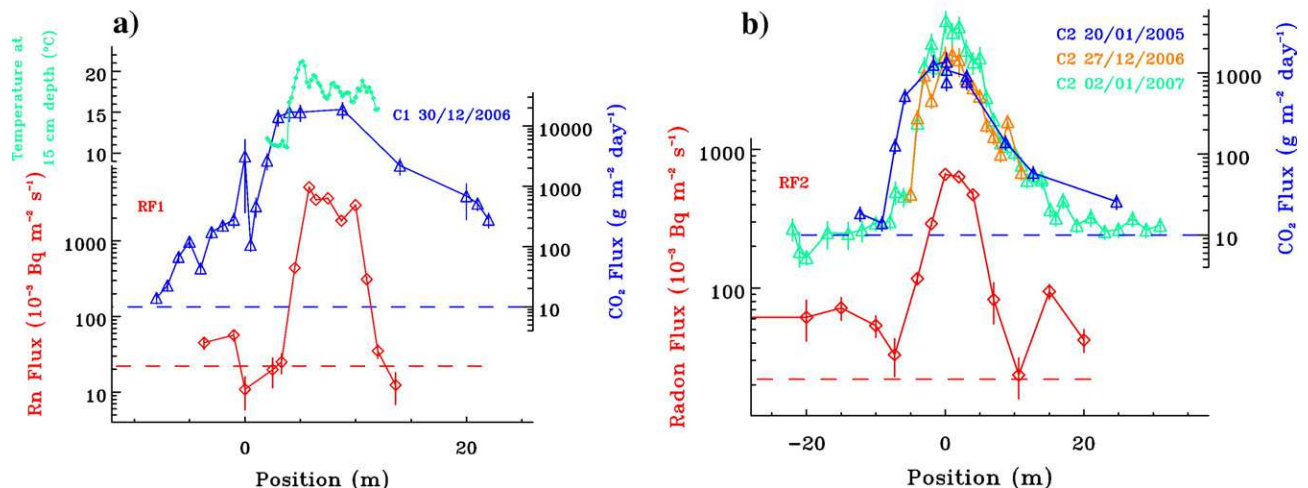


Fig. 6. Carbon dioxide and radon flux versus position for profiles C1/RF1 (a) and profiles C2/RF2 (b). Locations of profiles are shown in Fig. 3. Temperature in the soil at 15 cm depth is also shown in a). Dashed lines indicate standard soil background levels.

amounts to $0.25 \pm 0.07 \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Note that this value did not include localized discharge points, partly buried in terrace scarps, where the flux could not be measured with the accumulation chamber method. It thus provided a minimum estimate of the main carbon dioxide discharge of the system.

4.2. Results on the radon and radium concentration in spring water

The averaged concentrations of radium-226 and radon-222 in the Syabru–Bensi are given in Table 2 and the radon concentration is displayed versus temperature in Fig. 7. Measurements from the Chilime hot springs and from a spring located above Syabru–Bensi are also given in Fig. 7 for comparison. Radon-222 concentrations in Syabru–Bensi and Chilime hot springs varied from 0.25 to 3 Bq·L⁻¹. Radium concentration activities varied from <0.06 to 0.25 Bq·L⁻¹. Radon is not in equilibrium with radium, thus indicating that the radon source is not within the water, but must originate from the mineral framework, or must be transferred from a radon-rich gas phase.

4.3. Results on the radon concentration in air

High radon concentrations, varying from $35\,000 \pm 900$ to $41\,000 \pm 900 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ were observed in the bubbles in discharge zone 2 (location shown in Fig. 3), and a similar concentration of $36\,000 \pm 900 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ was measured in the dry gas discharged in zone 1. Note that the regular radon concentration in the free air is in the range 20 to 100 Bq·m⁻³ (Nazaroff, 1992). A concentration of $25\,000 \pm 800 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ was obtained in the gas bubbles collected in the spring at point SBC2. These values were obtained using Lucas cells in 2005. Using KODALPHA™ films, values varying from 8000 to $26\,000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ were observed in 2007 in the soil of zone 1, at a depth of 20 cm. The radon concentration was also monitored at a depth of 30 cm, near profile C2 with a BARASOL™ probe (see location in Fig. 3) and was found to vary between 25000 and $60\,000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ from January 2005 to January 2006. The radon concentration in the soil at 20 cm depth, 200 m from the springs, had a value of about $4400 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, which lies within the usual range (e.g., Nazaroff, 1992). This indicates that most of the radon present in the vicinity of the gas discharge was associated with the hot spring system and was not produced locally in the upper soil. All the measurements, thus, consistently revealed anomalous radon concen-

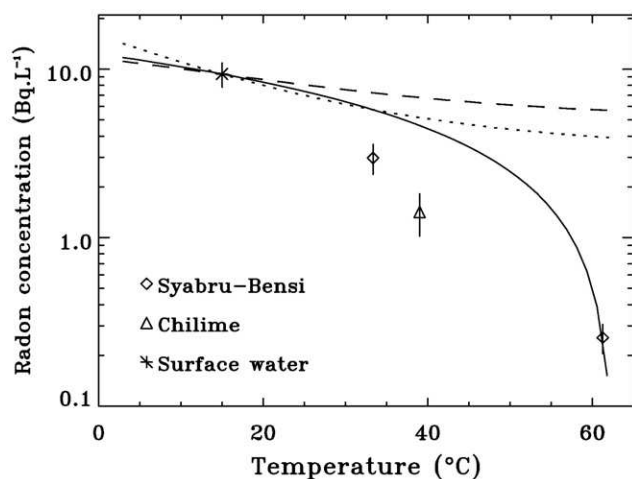


Fig. 7. Radon-222 activity concentration in water versus water temperature, including results from Syabru–Bensi and Chilime hot springs and from a surface fresh water spring located above Syabru–Bensi. The full line corresponds to pure mixing between the surface water and the 60 °C discharge point at Syabru–Bensi. The dotted line corresponds to the effect of the temperature variation of the partition coefficient κ_w (see Eq. (4)) with a water saturation of 5%. The dashed line corresponds to the same effect with a water saturation of 80%.

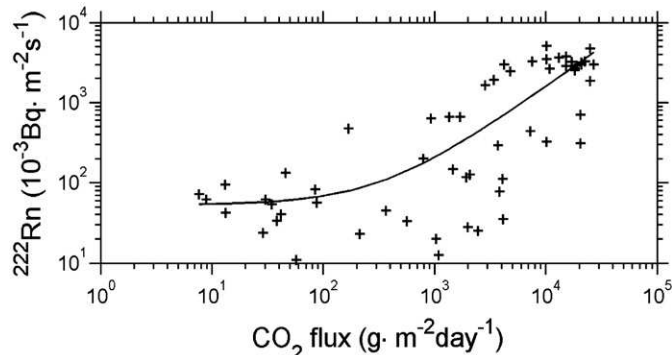


Fig. 8. Radon-222 versus carbon dioxide flux. The CO₂ flux at each radon-222 measurement point is interpolated from the map (Fig. 3) when not available at the same location. The line corresponds to a robust least square fit. The radon flux of this line is given as $77.7 + 0.156 \times \text{CO}_2 \text{ flux}$.

tration from 16000 to more than $50\,000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ in the gas discharges, in the bubbles and in the soil in the vicinity of the hot spring discharges.

At one location (gas zone 1 in Fig. 3), the radon concentration was monitored 10 cm above ground surface over 24 h with a BARASOL™ probe and was found to remain stable between 16300 and $20\,100 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. With a Lucas cell, air sampled 10 cm above ground surface in zone 2 in 2005 had a similar radon concentration of $16\,000 \pm 900 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. With KODALPHA™ films, radon concentrations varying from 12000 to $20\,000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ was observed 5 cm above ground surface. The gas discharges, thus, induce a clear signature in the atmosphere.

4.4. Results on the radon flux from the ground

Punctual results from radon concentrations measurements lead us to undertake a more systematic map of radon flux in 2007. The results are shown in Fig. 3 and two profiles are shown in Fig. 6. Large anomalous values of the radon flux were observed, reaching $(5200 \pm 360) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ in profile RF1 and $(660 \pm 30) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ in profile RF2. Recall that the average radon flux from the soil is about $22 \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (Nazaroff, 1992). In profile RF1 (Fig. 6a), the radon anomaly was associated with a small, but nonetheless clear, temperature anomaly. In both profiles, peak radon fluxes were associated with maximum carbon dioxide flux.

The radon-222 flux is shown versus CO₂ flux in Fig. 8. To a first approximation, radon-222 flux seems related to CO₂ flux. However, the correlation coefficient amounts to 0.56 only and it is premature to consider radon-222 flux as a proxy of CO₂ flux. In both profiles RF1 and RF2, the domain associated with the radon flux, is narrower than the domain with maximum the carbon dioxide flux. The radon distribution falls off with sharp transitions, whereas the carbon dioxide drops off more slowly, showing an asymmetric bell shape in Fig. 6.

Values of the radon flux larger than $80 \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ were observed up to 20 m from the main gas discharges (1, 1b and 2 in Fig. 3), with peak values larger than $2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ also observed near zone 2 in the cliff area above the water springs. In 2005, the single radon-222 flux measurement (location shown in Fig. 3, data in Fig. 5b), showed a spectacular flux of $19 \pm 5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Such a high value was not encountered during the 2007 campaign. However, measurements of the radon flux could not be reproduced at the exact same location because part of the scarp had collapsed. Therefore, we consider that the highest radon flux measured so far in Syabru–Bensi, in a reproducible manner, is $(5200 \pm 360) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ as quoted above.

At one location in gas zone 1 (Fig. 3), characterized in January 2007 by a flux of $(2600 \pm 300) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, measurements were repeated. In September 2007, a value of $(2100 \pm 300) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ was obtained. From 26 December 2007 to 9 January 2008, twenty measurements were again performed at the same point, with an average value of $(3690 \pm$

$140) \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Temporal variations thus remained of the order of 15 to 25% over a one-year time period.

4.5. Results on the composition of the gas

Four gas samples were collected in August 2007 at location 1 (Fig. 3). Mass scanning reveals that the gas is dominated by CO_2 , with minor fraction of air (N_2 , O_2 , Ar). No traces of H_2 , H_2S , CO or SO_2 have been detected in the samples. Based on manometric measures, CO_2 concentrations varied from 73% to 86%. The $\delta^{13}\text{C}$ values of the four gas samples are uniform at $-0.8 \pm 0.3\text{‰}$. The identified gas discharges thus are compatible with degassing associated with metamorphic decarbonation (Evans et al., 2008; Becker et al., 2008).

5. Discussion

The peak value of the carbon dioxide flux measured in Syabru-Bensi, $19000 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$, is spectacular and is similar to values reported on volcanoes. Comparable values have been reported for example on the Stromboli volcano in Italy (Finizola et al., 2006), whereas larger values, up to $5 \times 10^4 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$, have been reported on the Masaya volcano in Nicaragua (Lewicki et al., 2003a). At the Rotorua geothermal system in New Zealand, values up to $11540 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ were reported (Werner and Cardellini, 2006). Commonly reported values on volcanoes and geothermal fields, however, are significantly smaller. A mean value of $1000 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ is for example determined on the San Vicente volcano in El Salvador (Salazar et al., 2002). In the Dixie Valley geothermal field in California (Bergfeld et al., 2001), values reaching up to $570 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ are only observed at one location adjacent to a fumarole.

Carbon dioxide fluxes ranging from 4 to $107 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ are observed around the San Andreas Fault in Parkfield and ranging from 10 to $428 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ around the Calaveras Fault in Hollister (Lewicki et al., 2003b). The flux observed in Syabru-Bensi, thus, is significantly larger than the flux measured in the vicinity of these active faults of California. Note that, in these examples from California, values of ^{13}C anomalies actually suggest a biogenic origin of the carbon dioxide.

The radon concentrations measured in the air or soil in Syabru-Bensi are larger or similar to the peak values, of the order of $20000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, observed at Stromboli volcano in Italy (Cigolini et al., 2005), and larger than the range, 4 to $10000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, reported for the gas fumarole at Merapi (Zimmer and Erzinger, 2003).

In contrast, the radon-222 concentrations in water (Table 2) are rather small compared with the range 1 to $887.3 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ reported for Himalayan springs in India (Choubey et al., 2000; Virk et al., 2002; Ramola et al., 2006) or similar values observed in fresh groundwater in the Sudety Mountains of Poland (Przylibski et al., 2004). Temperatures corresponding to these various measurements are not given. Our data suggest an exponential trend versus temperature (Fig. 7).

The variation of the radon-222 concentration with temperature in Syabru-Bensi could be first interpreted assuming there is pure mixing between a high temperature reservoir (radon-poor) and a low-temperature reservoir represented by the surface water (comparatively radon-rich). This linear model (full line in Fig. 7) tends to overestimate the radon concentration in the intermediate range. Another source of temperature variation, in principle, is the temperature sensitivity of the partition coefficient κ_w defined as (e.g., Nazaroff, 1992):

$$\kappa_w(T) = \frac{C_w}{C_a} \cong 0.105 + 0.403e^{-0.0502T}, \quad (3)$$

where C_w is the radon activity concentration in water, C_a in the air phase in equilibrium with the water phase, and T is the temperature in

$^{\circ}\text{C}$. If the water phase occupies a fraction S_w of the available volume, then the concentration in water depends on S_w and the partition coefficient κ_w :

$$C_w = C_0 \frac{\kappa_w}{1 - S_w + S_w \kappa_w}, \quad (4)$$

where C_0 is the radon concentration in the available pore space volume. The temperature variation predicted by Eq. (4) is shown in Fig. 7 for two values of S_w . It remains largely insufficient to account for the observed trend.

The observed reduction of radon concentration with temperature, thus, cannot be explained only with a pure mixing effect or the temperature sensitivity of the partition coefficient. Another possibility is that the radon originally present in the hot waters has already been depleted by degassing at depth at a higher temperature, which is coherent with the model proposed to account for the ^{13}C enrichment (Evans et al., 2008; Becker et al., 2008). Another possibility is that the transit times associated with water transport from the radon source are significantly larger than the radon half-life and that no radon is added in the subsurface in the vicinity of the discharge points.

For a concentration in air of $40000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, the concentration of radon in water in equilibrium with this air at a temperature of 60°C is given by the partition coefficient (Eq. (3)) and amounts to about $5 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$. The data of Table 2 thus suggest that gas and water phases are not in equilibrium in Syabru-Bensi.

The most surprising radon measurement in Syabru-Bensi is definitely the radon flux, which is larger than $2000 \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ over an area larger than 100 m^2 . Such a radon flux is considerable; it is not significantly different from the maximum value of $6500 \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ reported in the vicinity of a uranium mine site in Australia (Bollhöfer et al., 2006), and it is two orders of magnitude larger than the average radon flux from the soil. Our methodology, based on a prior survey of the CO_2 flux, was remarkably effective to locate the points of promising radon-222 measurements. Locating the high radon flux points would have been a considerably longer process otherwise.

Large degassing in the Himalaya was suggested by geochemical properties of the hot springs (Evans et al., 2008; Becker et al., 2008). In this study, we show that, indeed, a large flux of carbon dioxide from the soil can be directly observed at the Syabru-Bensi hot springs, with an estimated emission flux around the main gas discharge of $0.25 \pm 0.07 \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$, integrated over an area of 240 m^2 , corresponding to $(8 \pm 2) \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$ or $350 \pm 90 \text{ ton} \cdot \text{a}^{-1}$. First, we can compare this flux with the dissolved bicarbonate alkalinity flux associated with the hot spring discharge. The flow rate corresponding to the main gas discharge has been measured at point SBB5 (Fig. 3) and amounts to $0.23 \text{ L} \cdot \text{s}^{-1}$. Given the calculated alkalinity of the water ($19 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, see Table 1), the dissolved bicarbonate flux from the hot spring is $0.23 \times 0.019 = 0.0044 \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. The degassed carbon dioxide flux, thus, is about 50 times larger than that from the spring. There is a large uncertainty on this number because the water discharge rate is poorly known. The mean alkalinity flux due to the consumption of atmospheric CO_2 by silicate weathering in the Trisuli river basin, with area 4100 km^2 , is known with better accuracy and is estimated to be around $7.7 \times 10^8 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$ (France-Lanord et al., 2003; Evans et al., 2004). Thus, our integrated flux at a single location is already 1% of the total silicate derived chemical erosion flux transported by the whole Trisuli river. In the Rotorua geothermal field (Werner and Cardellini, 2006), it was concluded that the majority of the deep carbon is released in the form of carbon dioxide gas, with less than one tenth dissolved in, or released from the fluids.

The relationship between the gaseous and dissolved phases of carbon dioxide in Syabru-Bensi needs to be investigated in more details. The isotopic composition of the gaseous CO_2 indicates that it is at equilibrium with the dissolved HCO_3^- of the spring water for temperatures between 35° and 50°C (Szaran, 1997). This is rather unlikely in the

hypothesis of a simple hydrothermal water undergoing continuous degassing due to over saturation with respect to calcite. In such a process, the gas that is sampled should be a cumulative fraction of the total CO₂ degassed and it should therefore have a $\delta^{13}\text{C}$ value lower than that calculated in equilibrium with the spring water, which represents the last stage of degassing (Evans et al., 2008). Another possibility is that the system is buffered by the gaseous CO₂. In this hypothesis, the dominant pool of carbon is the gas phase, and it controls the isotopic composition of the DIC. More data will be needed to resolve this important issue.

At this time, it is not possible to state whether the large discharge of carbon dioxide at Syabru–Bensi is a local phenomenon or a general feature of the MCT zone. If the source is metamorphic decarbonation, it is expected to be homogeneous laterally. The surface flux, however, should be dominated by percolation pathways, which could be a complex combination of fracture networks, sismotectonic history and topography. Comprehensive mapping of carbon dioxide around the MCT, around the hot springs and possibly away from them, is necessary to resolve this issue. In addition, sulphur and sulphuric acid must play an important role in the Syabru–Bensi hot spring chemistry. At this time, we do not know how the release of H₂S is related to the CO₂ and radon-222 vents.

6. Conclusions

This work confirms the suspected presence of significant degassing in the Himalaya and the consequences in terms of CO₂ mass balance should be addressed in detail. Furthermore, the large CO₂ and radon fluxes observed in Syabru–Bensi definitely provide a powerful tool to study various fundamental and practical problems associated with measurements of gas flux, useful in current environmental or industrial problems.

The relationship between carbon dioxide and radon fluxes still needs to be clarified. If this relationship is well understood, it may be possible to avoid the difficulties of maintaining permanent CO₂ instrumentation, which are fragile and expensive. Indeed, long term temporal monitoring of radon concentration or radon fluxes with available autonomous sensor has been demonstrated in numerous sites (e.g., Richon et al., 2005), and is robust and cost effective. It is therefore important to study further the spatial and temporal properties of the radon signature of the CO₂ flux, both in Syabru Bensi, and at other hot springs.

Temporal variations may bear particular significance around hot springs of Central Nepal. The carbon isotopic studies support the concept that the carbon dioxide source is likely to be associated with metamorphic decarbonation inferred to take place at the downdip end of the nucleation zone of large Himalayan earthquakes. This further enhances the interest of monitoring the carbon dioxide and the radon flux as a function of time. Transient diffuse emissions of carbon dioxide have been observed, for example at the San Vicente volcano before and during some of the aftershocks of a 6.6 magnitude earthquake in El Salvador (Salazar et al., 2002). Similarly, a radon discharge was observed on the Taal volcano, Philippines, before a magnitude 7.1 earthquake (Richon et al., 2003). Precursory radon discharges have also been observed previously in the Himalaya (Virk and Singh, 1994; Virk et al., 1995; Walia et al., 2006). In the absence of a physical base for the generation of these signals, however, such earthquake precursors are still considered as a mere hypothesis to be examined critically (Geller, 1997).

The Syabru–Bensi system, located less than 20 km away from the earthquake nucleation zone, offers a potentially interesting way to study the processes preceding Himalayan earthquakes. However, it is important, first of all, to develop an adequate understanding of the properties of the system. This hot spring system, with its large activity over a restricted spatial scale, may be particularly helpful for clarifying some applied and fundamental aspects of gas mapping and monitoring. Himalayan hot springs, rather than exotic systems, emerge, first of all, as promising natural laboratories.

Acknowledgements

The authors thank the Department of Mines and Geology, Kathmandu, for its steady support over the years. Nabin Tamang is thanked for providing access to his property. The Centre de recherches IPGP Schlumberger Total sur le stockage géologique du CO₂ is thanked for financial support and Jean Aupiais for radium analysis. Paul Tapponnier is thanked for his unflinching enthusiasm and luminous inspiration. AR thanks Terry Young from Colorado School of Mines for his support. The original manuscript was considerably improved thanks to Jean-Philippe Avouac and Frédéric Girault, and thanks to the careful work of four dedicated reviewers. This paper is IPGP contribution number 2458.

References

- Aupiais, J., 2005. Radium measurement in water samples by α -liquid scintillation counting with α/β discrimination. *Analytica Chimica Acta* 532, 199–207.
- Avouac, J.-P., Bollinger, L., Lavé, J., Cattin, R., Flouzat, M., 2001. Le cycle sismique en Himalaya. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences Paris* 333, 513–529.
- Baubron, J.-C., Allard, P., Sabroux, J.-C., Tedesco, D., Toutain, J.-P., 1991. Soil gas emanations as precursory indicators of volcanic eruptions. *Journal of Geological Society London* 148, 571–576.
- Becker, J.A., Bickle, M.J., Galy, A., Holland, T.J.B., 2008. Himalayan metamorphic CO₂ fluxes: quantitative constraints from hydrothermal springs. *Earth Planetary Science Letters* 265, 616–629.
- Belloni, P., Cavaioi, M., Ingraio, G., Mancini, M., Notavo, M., Santoroni, P., Torri, G., Vasselli, R., 1995. Optimization and comparison of three different methods for the determination of Rn-222 in water. *Science of the Total Environment* 173–174, 61–67.
- Bergfeld, D., Goff, F., Janik, C.J., 2001. Elevated carbon dioxide flux at the Dixie valley geothermal field, Nevada; relations between surface phenomena and the geothermal reservoir. *Chemical Geology* 177, 43–66.
- Bollhöfer, A., Storm, J., Martin, P., Tims, S., 2006. Geographic variability in radon exhalation at a rehabilitated uranium mine in the Northern Territory, Australia. *Environmental Monitoring and Assessment* 114, 313–330.
- Bollinger, L., Avouac, J.-P., Cattin, R., Pandey, M.R., 2004. Stress buildup in the Himalaya. *Journal of Geophysical Research* 109, B11405.
- Bollinger, L., Henry, P., Avouac, J.-P., 2006. Mountain building in the Nepal Himalaya: thermal and kinematic model. *Earth and Planetary Science Letters* 244, 58–71.
- Chiodini, G., Cioni, R., Guidi, M., Raco, B., Marini, L., 1998. Soil CO₂ flux measurements in volcanic and geothermal areas. *Applied Geochemistry* 13, 543–552.
- Choubey, V.M., Bartarya, S.K., Ramola, R.C., 2000. Radon in Himalayan springs: a geohydrogeological control. *Environmental Geology* 39, 523–530.
- Cigolini, C., Gervino, G., Bonetti, R., Conte, F., Laiolo, M., Coppola, D., Manzoni, A., 2005. Tracking precursors and degassing by radon monitoring during major eruptions at Stromboli Volcano (Aeolian Islands, Italy). *Geophysical Research Letters* 32, L12308.
- Ciotoli, G., Guerra, M., Lombardi, S., Vittori, E., 1998. Soil gas survey for tracing seismogenic faults: a case study in the Fucino basin, Central Italy. *Journal of Geophysical Research* 103, 23 781–23 794.
- Evans, M.J., Derry, L.A., France-Lanord, C., 2004. Geothermal fluxes of alkalinity in the Narayani river system of central Nepal. *Geochemistry Geophysics Geosystems* 5, Q08011.
- Evans, M.J., Derry, L.A., France-Lanord, C., 2008. Degassing of metamorphic carbon dioxide from the Nepal Himalaya. *Geochemistry Geophysics Geosystems* 9, Q04021.
- Evans, W.C., Sorey, M.L., Kennedy, B.M., Stonestrom, D.A., Rogie, J.D., Shuster, D.L., 2001. High CO₂ emissions through porous media: transport mechanisms and implications for flux measurement and fractionation. *Chemical Geology* 177, 15–29.
- Ferry, C., Benito, A., Richon, P., Robé, M.C., 2001. An automatic device for measuring the effect of meteorological factors on radon-222 flux from soils in the long term. *Radiation Protection Dosimetry* 93, 271–274.
- Finizola, A., Revil, A., Rizzo, E., Piscitelli, S., Ricci, T., Morin, J., Angeletti, B., Mocochain, L., Sortino, F., 2006. Hydrogeological insights at Stromboli volcano (Italy) from geoelectrical, temperature, and CO₂ soil degassing investigations. *Geophysical Research Letters* 33, L17304.
- France-Lanord, C., Evans, M., Hurtrez, J.E., Riotte, J., 2003. Annual dissolved fluxes from Central Nepal rivers: budget of chemical erosion in the Himalayas. *C. R. Geoscience* 325, 1131–1140.
- Gaillardet, J., Dupré, B., Louvat, P., Allègre, C.J., 1999. Global silicate weathering and CO₂ consumption rates deduced from the chemistry of large rivers. *Chemical Geology* 159, 3–30.
- Galy, A., France-Lanord, C., 1999. Weathering processes in the Ganges–Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. *Chemical Geology* 159, 31–60.
- Geller, R.J., 1997. Earthquake prediction, a critical review. *Geophysical Journal International* 131, 425–450.
- Giggenbach, W.F., Gonfiantini, R., Jangi, B.L., Truesdell, A.H., 1983. Isotopic and chemical composition of Parbati Valley geothermal discharges, northwest Himalaya, India. *Geothermics* 12, 199–222.
- Irwin, W.P., Barnes, I., 1980. Tectonic relations of carbon dioxide discharges and earthquakes. *Journal of Geophysical Research* 85, 3115–3121.
- Kotarba, M., 1986. Hydrogeological investigations in Seti Khola and Trisuli thermal springs areas (Nepal Himalayas). *Geologia* 12, 37–51.
- Le Fort, P., 1975. Himalaya: the collided range. Present knowledge of the continental arc. *American Journal of Science* 275, 1–44.

- Lemonnier, C., Marquis, G., Perrier, F., Avouac, J.-P., Chitrakar, G., Kafle, B., Sapkota, S., Gautam, U., Tiwari, D., Bano, M., 1999. Electrical structure of the Himalaya of Central Nepal: high conductivity around the mid-crustal ramp along the MHT. *Geophysical Research Letters* 26, 3261–3264.
- Lewicki, J.L., Connor, C., St-Amand, K., Stix, J., Spinner, W., 2003a. Self-potential, soil CO₂ flux, and temperature on Masaya volcano, Nicaragua. *Geophysical Research Letters* 30, 1817.
- Lewicki, J.L., Evans, W.C., Hilley, G.E., Sorey, M.L., Rogie, J.D., Brantley, S.L., 2003b. Shallow soil CO₂ flow along the San Andreas and Calaveras Faults, California. *Journal of Geophysical Research* 108, 2187.
- Lewicki, J.L., Bergfeld, D., Cardellini, C., Chiodini, G., Granieri, D., Varley, N., Werner, C., 2005. Comparative soil CO₂ flux measurements and geostatistical estimation methods on Masaya volcano, Nicaragua. *Bulletin Volcanologique* 68, 76–90.
- Lewicki, J.L., Fischer, M.L., Hilley, G.E., 2008. Six-week time series of eddy covariance CO₂ flux at Mammoth Mountain, California: performance evaluation and role of meteorological forcing. *Journal of Volcanology Geothermal Research* 171, 178–190.
- Lucas, H.F., 1957. Improved low-level alpha-scintillation counter for radon. *Review of Scientific Instruments* 28, 680–683.
- Macfarlane, A.M., Hodges, K.V., Lux, D., 1992. A structural analysis of the Main Central Thrust zone, Langtang National Park, central Nepal Himalaya. *Bulletin of the Geological Society of America* 104, 1389–1402.
- Nazaroff, W.W., 1992. Radon transport from soil to air. *Reviews of Geophysics* 30, 137–160.
- Papastefanou, C., 2002. An overview of instrumentation for measuring radon in soil gas and groundwaters. *Journal of Environmental Radioactivity* 63, 271–283.
- Przylibski, T.A., Mamont-Ciesla, K., Kusiak, M., Dorda, J., Kozłowska, B., 2004. Radon concentrations in groundwaters of the Polish part of the Sudety Mountains (SW Poland). *Journal of Environmental Radioactivity* 75, 193–209.
- Quade, J., English, N., DeCelles, P.G., 2003. Silicate versus carbonate weathering in the Himalaya: a comparison of the Arun and Seti River watersheds. *Chemical Geology* 202, 275–296.
- Ramola, R.C., Choubey, V.M., Prasad, Y., Prasad, G., Bartarya, S.K., 2006. Variation in radon concentration and terrestrial gamma radiation dose rates in relation to the lithology in southern part of Kumaon Himalaya, India. *Radiation Measurements* 41, 714–720.
- Richon, P., Sabroux, J.-C., Halbwachs, M., Vandemeulebrouck, J., Poussielgue, N., Tabbagh, J., Punongbayan, R., 2003. Radon anomaly in the soil of Taal volcano, the Philippines: a likely precursor of the M7.1 Mindoro earthquake (1994). *Geophysical Research Letters* 30, 1481.
- Richon, P., Perrier, F., Sabroux, J.-C., Trique, M., Ferry, C., Voisin, V., Pili, E., 2005. Spatial and time variations of radon-222 concentration in the atmosphere of a dead-end horizontal tunnel. *Journal of Environmental Radioactivity* 78, 179–198.
- Salazar, J.M.L., Pérez, N.M., Hernandez, P.A., Soriano, T., Barahona, F., Olmos, R., Cartagena, R., Lopez, D.L., Lima, R.N., Melian, G., Galindo, I., Padron, E., Sumino, H., Notsu, K., 2002. Precursory diffuse carbon dioxide degassing signature related to a 5.1 magnitude earthquake in El Salvador, Central America. *Earth and Planetary Science Letters* 205, 81–89.
- Szaran, J., 1997. Achievement of carbon isotope equilibrium HCO₃⁻ (solution)–CO₂ (gas). *Chemical Geology* 142, 79–86.
- Tanner, A.B., 1964. Radon migration in the ground: a review. *The Natural Radiation Environment*. University of Chicago Press, Chicago, pp. 161–190.
- Trique, M., Richon, P., Perrier, F., Avouac, J.-P., Sabroux, J.-C., 1999. Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature* 399, 137–141.
- Upreti, B.N., 1999. An overview of the stratigraphy and tectonics of the Nepal Himalaya. *Journal of Asian Earth Sciences* 17, 577–606.
- Virk, H.S., Singh, B., 1994. Radon recording of Uttarkashi earthquake. *Geophysical Research Letters* 21, 737–740.
- Virk, H.S., Walia, V., Sharma, A.K., 1995. Radon precursory signals of Chamba earthquake. *Current Science* 69, 452–454.
- Virk, H.S., Sharma, A.K., Sharma, N., 2002. Radon and helium monitoring in some thermal springs of North India and Bhutan. *Current Science* 82, 1423–1424.
- Walia, V., Virk, H.S., Bajwa, B.S., 2006. Radon precursory signals for some earthquakes of magnitude >5 occurred in N.–W. Himalaya: an overview. *Pure Applied Geophysics* 163, 711–721.
- Werner, C., Cardellini, C., 2006. Comparison of carbon dioxide emissions with fluid upflow, chemistry, and geologic structures at the Rotorua geothermal system, New Zealand. *Geothermics* 35, 221–238.
- Yin, A., 2006. Cenozoic tectonic evolution of the Himalayan orogen as constrained by along-strike variation of structural geometry, exhumation history, and foreland sedimentation. *Earth-Sciences Reviews* 76, 1–131.
- Zimmer, M., Erzinger, J., 2003. Continuous H₂O, CO₂, 222Rn and temperature measurements on Merapi volcano, Indonesia. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 125, 25–38.

Dipolar self-potential anomaly associated with carbon dioxide and radon flux at Syabru-Bensi hot springs in central Nepal

S. Byrdina,¹ A. Revil,^{2,3} S. R. Pant,⁴ B. P. Koirala,⁵ P. L. Shrestha,⁵ D. R. Tiwari,⁵ U. P. Gautam,⁵ K. Shrestha,⁴ S. N. Sapkota,⁵ S. Contraires,⁶ and F. Perrier⁷

Received 14 October 2008; revised 7 April 2009; accepted 25 June 2009; published 3 October 2009.

[1] The Syabru-Bensi hot springs are located at the Main Central Thrust (MCT) zone in central Nepal. High carbon dioxide and radon exhalation fluxes (reaching $19 \text{ kg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ and $5 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, respectively) are associated with these hot springs, making this site a promising case to study the relationship between self-potential and fluids (gas and water) exhalation along a fault zone. A high-resolution self-potential map, covering an area of 100 m by 150 m that surrounds the main gas and water discharge spots, exhibits a dipolar self-potential anomaly with a negative peak reaching -180 mV at the main gas discharge spot. The positive lobe of the anomaly reaching 120 mV is located along the terraces above the main gas and water discharge spots. Several electrical resistivity tomograms were performed in this area. The resistivity tomogram crossing the degassing area shows a dipping resistive channel interpreted as a fracture zone channeling the gas and the hot water. We propose a numerical finite difference model to simulate the flow pattern in this area with the constraints imposed by the electrical resistivity tomograms, the self-potential data, the position of the gas vents, and hot water discharge area. This study provides insights on the generation of electrical currents associated with geothermal circulation in a geodynamically active area, a necessary prerequisite to study, using self-potentials, a possible modulation of the geothermal circulation by tectonic activity.

Citation: Byrdina, S., et al. (2009), Dipolar self-potential anomaly associated with carbon dioxide and radon flux at Syabru-Bensi hot springs in central Nepal, *J. Geophys. Res.*, 114, B10101, doi:10.1029/2008JB006154.

1. Introduction

[2] Self-potential signals are the electrical field signature of the occurrence of natural polarization mechanisms inside geological systems [e.g., *Nourbehecht*, 1963]. Source contributions include the drag of the excess of electrical charge occurring in the vicinity of the pore water interface by the flow of the pore water, the so-called streaming potential contribution, [e.g., *Nourbehecht*, 1963; *Sill*, 1983; *Bolève et*

al., 2007b], thermoelectric and electrodiffusional phenomena [e.g., *Sill*, 1983; *Revil et al.*, 1999; *Darnet et al.*, 2004; *Maineult et al.*, 2006], and electroredox phenomena [*Naudet et al.*, 2003; *Minsley et al.*, 2007; *Castermant et al.*, 2008]. Maps of self-potential signals are easy to perform because they only require two nonpolarizing electrodes and a sensitive voltmeter (sensitivity $\sim 0.1 \text{ mV}$) with high input impedance ($\geq 100 \text{ M}\Omega$). A self-potential anomaly is defined as a spatial variation of the electrical potential distribution, at the surface of the Earth or in boreholes, with respect to a reference electrode, located far enough from the disturbed zone.

[3] With the exception of the presence of ore and graphite mineralization, the self-potential anomalies observed in geothermal field and active volcanoes are mainly associated with the flow of the groundwater [e.g., *Corwin and Hoover*, 1979; *Goldstein et al.*, 1989; *Zlotnicki and Nishida*, 2003; *Finizola et al.*, 2003; *Jardani et al.*, 2008]. A vigorous flow of groundwater can generate self-potential anomalies of the order of several hundreds of millivolts [e.g., *Sasai et al.*, 1997; *Ishido et al.*, 1997; *Lénat et al.*, 1998; *Lewicki et al.*, 2003; *Aizawa et al.*, 2005; *Finizola et al.*, 2006] and sometimes of several volts [*Finizola et al.*, 2004]. Therefore, a number of researches have been conducted to model the self-potential anomalies in terms of groundwater flow

¹Laboratoire Magmas et Volcans Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal, IRD M163, UMR 6524, Clermont-Ferrand, France.

²Colorado School of Mines, Green Center, Department of Geophysics, Golden, Colorado, USA.

³Laboratoire de Géophysique Interne et Tectonophysique, UMR 5559, Université de Savoie, Equipe de Volcanologie, CNRS, Le Bourget du Lac, France.

⁴Central Department of Geology, Tribhuvan University, Kirtipur, Nepal.

⁵National Seismological Centre, Department of Mines and Geology, Lainchaur, Kathmandu, Nepal.

⁶Equipe de Géomatériaux et Environnement, IPGP, UMR 7154, Paris, France.

⁷Université Paris Diderot and Equipe de Géomagnétisme, IPGP, UMR 7154, Paris, France.

and thermohydromechanical disturbances [Corwin and Hoover, 1979; Revil and Pezard, 1998; Revil et al., 2004, 2005; Wilkinson et al., 2005; Jardani et al., 2006; Crespy et al., 2008; Revil et al., 2008].

[4] Streaming self-potential signals are generated by the divergence of the streaming current density associated with the convective drag of the excess of electrical charges contained in the pore water [Sill, 1983]. This implies that (1) understanding the polarity and strength of self-potential signals requires to solve an electrostatic Poisson equation using the resistivity distribution of the system [Sill, 1983; Revil and Pezard, 1998; Jardani et al., 2008] and (2) some groundwater flow patterns are not associated with any self-potential anomalies outside the source volume of groundwater flow (they are called annihilators by Jardani et al. [2008]).

[5] In pursuing this study, we have two goals. The former lies in the understanding of large-scale dipolar self-potential anomalies related to geothermal activity. Such anomalies have been observed in various areas of the world [Corwin and Fitterman, 1982; Goldstein et al., 1989; Schima et al., 1995; Apostolopoulos et al., 1997; Revil and Pezard, 1998; Jardani et al., 2008]. The quantitative interpretation of these self-potential anomalies is not straightforward because of the influence of different parameters like temperature, the fluid pressure, the permeability, the pH and salinity of the pore fluid [e.g., Sill, 1983; Yasukawa et al., 1993; Ishido and Pritchett, 1999; Aizawa et al., 2005; Uyeshima, 2007; Revil et al., 2008; Jardani et al., 2008]. Therefore, the self-potential can be used to constrain the geometry of groundwater flow only if additional and independent geological and geophysical information are available or can be inferred with a good accuracy [Finizola et al., 2006; Revil et al., 2008]. Acquisition of these complementary information at large scales is challenging and rarely performed. This problem justifies our interest for small-scale geothermal systems where modeling can be reasonably attempted and additional information easily gathered. One of the main applications of the self-potential method in these areas would be the nonintrusive estimate of the permeability of the faults acting as permeable fluid flow pathways.

[6] The second goal is related to fault activity. We believe indeed that such a detailed investigation is highly desirable in tectonically active areas because the time variations of the flux of gases and electrical signals could be related to the modulation of the tectonic stresses, at large scales, in the preparation phase of strong earthquakes or during the earthquakes themselves [Park et al., 2007] and/or by the existence of shock waves moving along fault planes [Revil and Cathles, 2002a, 2002b].

[7] In this paper, we present the results of a multiparameter investigation performed at a small-scale hydrothermal vent located around the Syabru-Bensi hot springs in central Nepal. Self-potential signals, discharge rates, and chemical composition of these hot springs, as well as ²²²Rn and CO₂ gas exhalation fluxes have been independently measured. This hydrothermal vent presents a particular interest because it is characterized by high exhalation fluxes observed over a confined area of few hundred square meters. This area is easily accessible for a detailed self-potential gas

flux mapping as well as for high-resolution resistivity tomographies.

2. Syabru-Bensi Hot Springs

[8] The Syabru-Bensi hot springs, located 52 km north of Kathmandu, are part of a series of hot springs (Figure 1a) found along the Main Central Thrust (MCT) zone [Evans et al., 2004]. The MCT separates Lesser Himalayan Precambrian to Paleozoic metasediments to the south, from Higher Himalayan Crystallines to the north [Upreti, 1999]. This thrust zone, usually considered inactive, is supposed to be branching at depth to the Main Himalayan Thrust (MHT). The MHT is the main structure accommodating the collision of India and Tibet [Bollinger et al., 2004]. Microseismicity and moderate earthquakes are mainly concentrated at mid crustal depth on a ramp of the MHT [Pandey et al., 1999]. Large Himalayan earthquakes, by contrast, activate a large section of the MHT from the higher Himalayas to its surface trace, referred to as the Main Frontal Thrust (MFT) in southern Nepal [Lavé et al., 2005]. The Syabru-Bensi hot springs are therefore located less than 10 km away from the nucleation zone of potentially large Himalayan earthquakes. This makes this area particularly interesting to monitor seismic activity using unconventional methods.

[9] The hot springs in Syabru-Bensi are located at the lower flank of an alluvial terrace incised by the Trisuli River (Figure 1b). Several springs on the left bank are covered by the river most of the time. On the right bank, most springs are located a few meters above the Trisuli. The site has been equipped with cemented basins and is traditionally used for ritual and domestic purposes by local Tamang, Tibetan, and Sherpa people (Figure 2). In this paper, we are mostly concerned with the area around these main springs. Their composition is given in Table 1. They are characterized by temperatures varying from 35 to 60 °C and flow rates varying between 0.06 and 0.3 L s⁻¹ depending on the discharge point. The electrical conductivities of spring waters vary from 1200 to 1900 μS cm⁻¹, corresponding to an electrical resistivity from 5 to 8 Ω m [Perrier et al., 2009]. The hottest and most saline water is collected by a plastic pipe (SBP0) from a spring located a few meters downstream of the basins (Figure 2).

[10] Gas discharges are observed around cavities of few tens of centimeters deep in the debris slope above the springs (Figure 2). The gas is mainly carbon dioxide. Isotopic ¹³C anomalies of hot springs in Nepal (including Syabru-Bensi hot springs) suggest a mechanism of metamorphic decarbonation followed by intense degassing [Evans et al., 2008; Becker et al., 2008]. The Syabru-Bensi hot springs could provide a prototype of carbon dioxide and fluid flow release to the atmosphere associated with active tectonics and orogenic processes.

[11] The diffusive gas flux on the ground was mapped by the accumulation chamber method. At main locations labeled as GD1, GD1b, and GD2 in Figure 2, values as high as 19 kg m⁻² d⁻¹ have been observed [Perrier et al., 2009]. These flux values exceed by thousand times a background level in the area, and are comparable to the CO₂ flux values recorded on active volcanoes [e.g., Lewicki et al., 2003; Finizola et al., 2006; Revil et al., 2008]. The gas discharges GD1 and GD1b are located in the terrace above the water

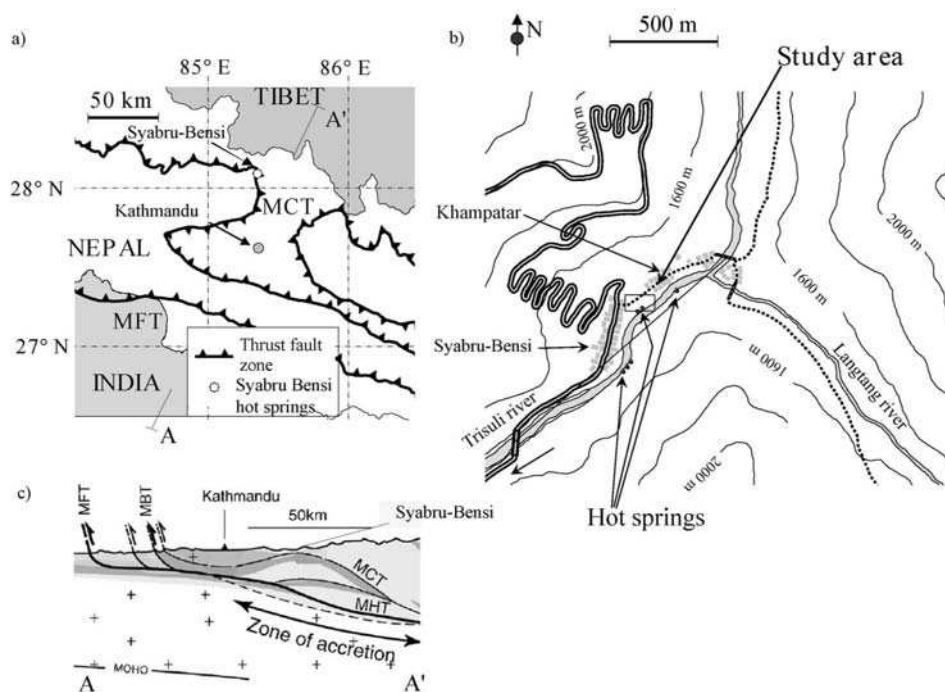


Figure 1. Localization of the survey area. (a) Simplified map of central Nepal with contours of Main Central Thrust (MCT), Main Fault Thrust (MFT), and location of the Syabru-Bensi hot springs. (b) Map of the site and localization of the study area (rectangle on the right side of the Trisuli River). Hot springs are observed on the both sides of the Trisuli River. Grey rectangles denote the position of the houses, and the dotted lines indicate the trails. (c) Simplified section across AA' profile shown in Figure 1a (after Bollinger *et al.* [2006] with permission from Elsevier).

spring (Figure 2) and have been studied in more detail [Perrier *et al.*, 2009]. Gas discharge GD2, located in the steep slope just above the water basins, is more difficult to access and has therefore been studied less intensely. A flux with a value larger than $1 \text{ kg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ is observed up to 5 to 10 m around the main gas discharges. This carbon dioxide flux is associated with an anomalous high ^{222}Rn flux, reaching $5 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, a value, comparable with values commonly measured on uranium waste [Bollhöfer *et al.*, 2006]. High radon flux associated with anomalous carbon dioxide flux at Syabru-Bensi gas discharge points suggest their connection to the pressurized zone at depth [Perrier *et al.*, 2009].

3. Field Investigations

[12] Self-potential mapping was performed from 28 December 2006 to 6 January 2007, namely, in the middle of the dry season, which, in this part of the Himalayas, lasts from November to March. During the mapping, the weather was sunny with no rainfall over more than a month. In this season, there is no agricultural activity in the mapped area. Vegetation is dry except for few isolated trees.

[13] Self-potential measurements were performed using nonpolarizable second generation Petiau Pb/PbCl₂-NaCl electrodes [Petiau, 2000] and a high impedance Metrix Mx20 voltmeter with sensibility about 0.1 mV. These electrodes are characterized by an internal resistance of about 200 Ω , a stability better than 0.1 mV over a period

of 1 year and a temperature sensitivity of about $200 \mu\text{V } ^\circ\text{C}^{-1}$ [Petiau, 2000]. Contact between the soil and the electrodes was checked using an AC ohm meter at 2 kHz and was found to be satisfactory with a maximal value of 35 k Ω . The soil was wet enough to ensure a good electrical contact. The reference electrode was placed in a not disturbed location (background values of both radon and carbon dioxide fluxes), but, because of practical reasons, relatively close to the gas discharges. Stability of the pair of electrodes used for mapping was checked by measuring their potential difference in the storage box. The difference of electrical potential was always smaller than 0.2 mV. Mapping was carried out on an area of approximately $100 \text{ m} \times 150 \text{ m}$ around the hot sources and gas discharge spots. It included over 1000 data points (Figure 4). Data interpolation shown in Figure 5 was performed using 2-D biharmonic spline interpolation technique [Sandwell, 1987]. This map will be interpreted below in section 4.

[14] Electrical resistivity tomography (ERT) profiles were carried out with a Terrameter SAS 300C and Terrameter SAS2000 Booster from ABEMTM. Several profiles were performed in the Syabru-Bensi area. In this paper, we use the results of two short pole-dipole profiles ERTa and ERTb (Figure 2) with a total length of 48 m each and 1.5 m minimal electrode spacing. We label these profiles ERTa and ERTb, respectively. Their positions are shown in Figures 2 and 4. The topography along the profile was measured by a leveling technique to an accuracy of $\sim 10 \text{ cm}$. Pole-dipole configuration has relatively good penetration

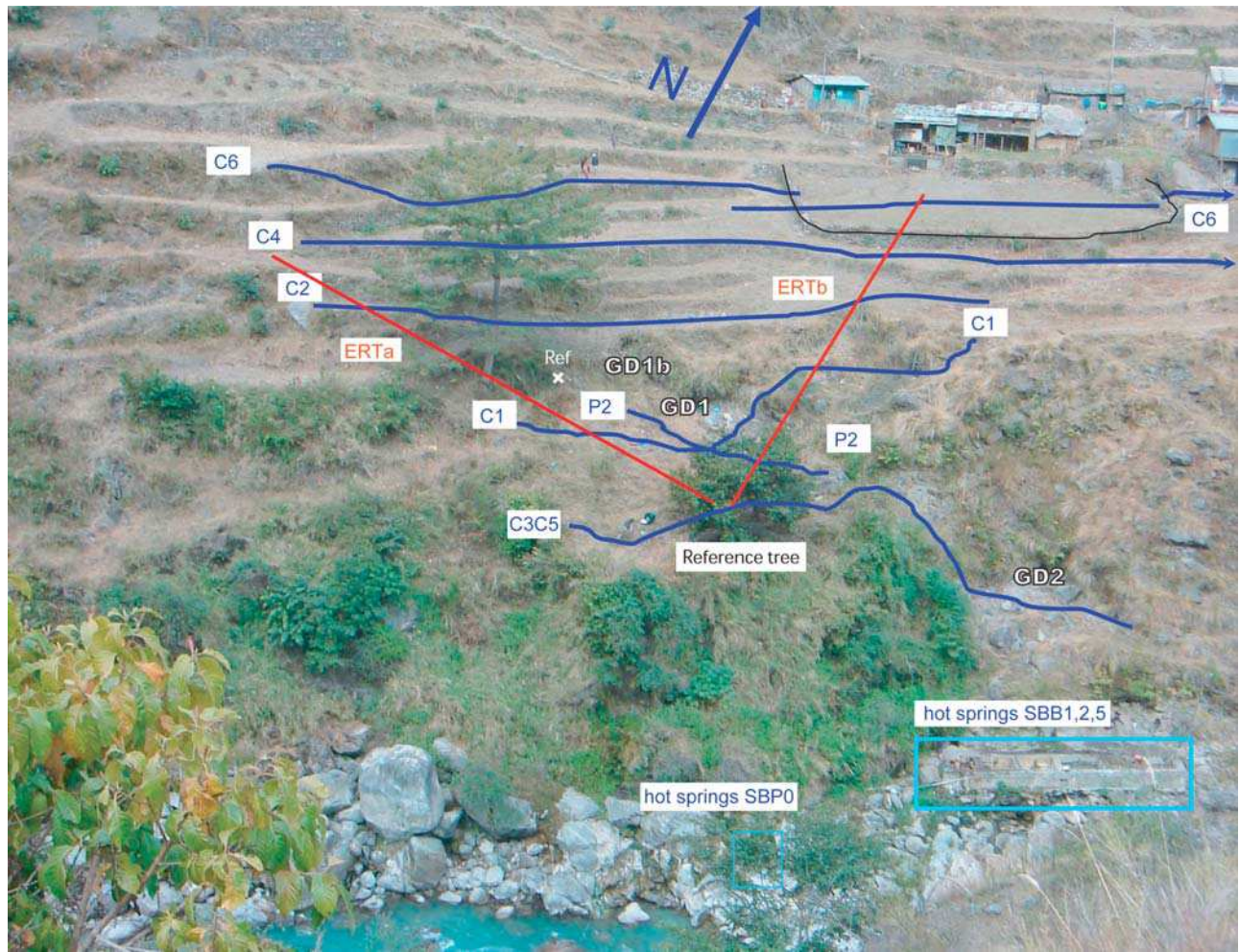


Figure 2. Study area around the hot springs (noted SBB 1–5 as in the work by *Perrier et al.* [2009]) and main gas discharge points GD1, GD1b, and GD2 with sulphate and sulfide deposits. Red solid lines indicate electrical resistivity tomography profiles (ERTa and ERTb), blue lines show CO₂ profiles, and the white cross indicates the self-potential reference point (Ref).

and is well adapted for areas with lateral heterogeneity and in the area where contrast in the electrical resistivities is not very high [*Ward, 1989*].

[15] Two-dimensional data inversion was performed using RES2DINV (Geotomo SoftwareTM) [*Loke and Barker, 1996*], which uses the smoothness-constrained method to perform the inverse problem [*Constable et al., 1987*]. The normalized root-mean-square (RMS) of a resistivity section is defined by

$$D_{rms} = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{\rho_{a(obs)} - \rho_{a(calc)}}{\rho_{a(obs)}} \right)^2 \right]^{1/2} 100\% \quad (1)$$

where N is the number of measurements used to build the apparent resistivity pseudosection [e.g., *Olayinka and Yaramanci, 2000*].

[16] The algorithm tries to reduce this quantity in an attempt to find a better model after each iteration. In our case, we also included the topography in the inversion of the

apparent resistivity data. The normalized RMS errors of our two profiles were below 5% at the fifth iteration (3.5% for ERTa and 4.4% for ERTb profile). This usually means that the apparent resistivity data are properly reproduced by the inverted resistivity model. Because the electrical resistivity tomograms exhibits patterns that are geologically and hydrogeologically meaningful (see sections 4 and 5), we believe that we can use ERT data for the modeling of the

Table 1. Composition of the Pore Water at Syabru-Bensi Springs^a

Element	Concentration ($\mu\text{mol L}^{-1}$)
Na ⁺	8230
K ⁺	2206
Ca ²⁺	3289
Mg ²⁺	2411
Li ²⁺	559
Fe ²⁺	30
HCO ₃ ⁻	19,320
F ⁻	80
Cl ⁻	949
SO ₄ ²⁻	1052

^aFrom *Perrier et al.* [2009].

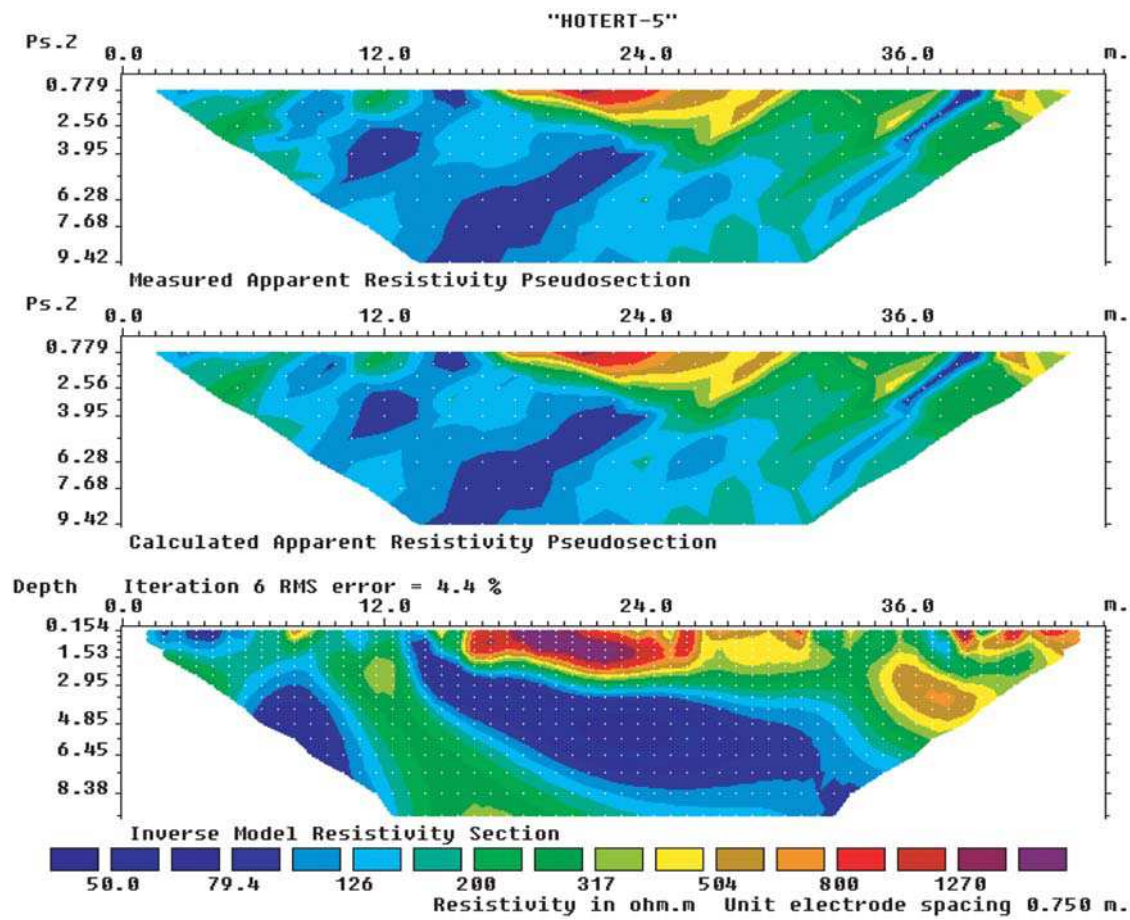


Figure 3. Results of the electric resistivity tomography for profile ERTb. (top) Measured apparent resistivity pseudosection, (middle) calculated apparent resistivity pseudosection, and (bottom) inverse model resistivity.

self-potential data. The quality of the ERT field data can be inspected on Figure 3 presenting a pseudosection and inversion results for ERTb profile. Noteworthy is the low level of near surface variations of apparent resistivity and a similarity over the whole section range between measured and calculated pseudosections.

4. Results

[17] The self-potential map is shown in Figure 4. This map includes a large fraction of the alluvial terrace on the right bank of the Trisuli River. For reference, the position of hot springs, several large trees, and the cemented basins shown in Figure 2, are also marked in Figure 4. No self-potential anomaly was observed in the immediate vicinity of the hot water springs themselves nor next to the Trisuli River. All the self-potential anomalies are localized just above the hot springs and gas discharge spots. The self-potential map exhibits an extended positive anomaly on the terrace above the Trisuli River bank superimposed with a butterfly shape anomaly around the hot springs. Sometimes, self-potential data display an anticorrelation with elevation, a pattern created by percolation of meteoric waters, called usually the topographic effect. The data shown in Figure 4, however, do not display any systematic anticorrelation with

the elevation. The absence of a significant topographic effect is also seen in Figures 7a and 7b.

[18] Figure 5a shows a magnification of the self-potential map in the area of interest, around the two main gas discharge spots GD1 and GD2. With respect to this reference station, the self-potential map exhibits a dipolar self-potential anomaly. The maximum amplitude of the positive lobe of this anomaly is 120 mV, its extent is about 90 m and a width is about 20 m. The negative peak reaches an amplitude of -180 mV. It is divided into two main lobes concentrated around the major gas discharge areas: gas discharges GD1, GD1b, and, separated by about 10 m, gas discharge GD2. The minimum value is -80 mV in gas discharge GD1 and -180 mV in gas discharge GD2. The two lobes of the negative anomaly seem to have symmetrical mirror images in the positive anomaly (Figure 5a).

[19] In Figure 5a, the self-potential map is overlain with the spatial structure of the CO₂ flux shown as contour lines, and with the fewer locations of radon flux measurements shown by triangles. The uncertainty of the CO₂ flux measurements are smaller than 15% for most flux values but can reach 30 to 50% for extremely high fluxes exceeding $10 \text{ kg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$. The uncertainty of the radon flux measurements varies from 20 to 30% for fluxes of the order of $10^{-2} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ to less than 5% for fluxes of the order of $1 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [Perrier et al., 2009]. The negative peak of

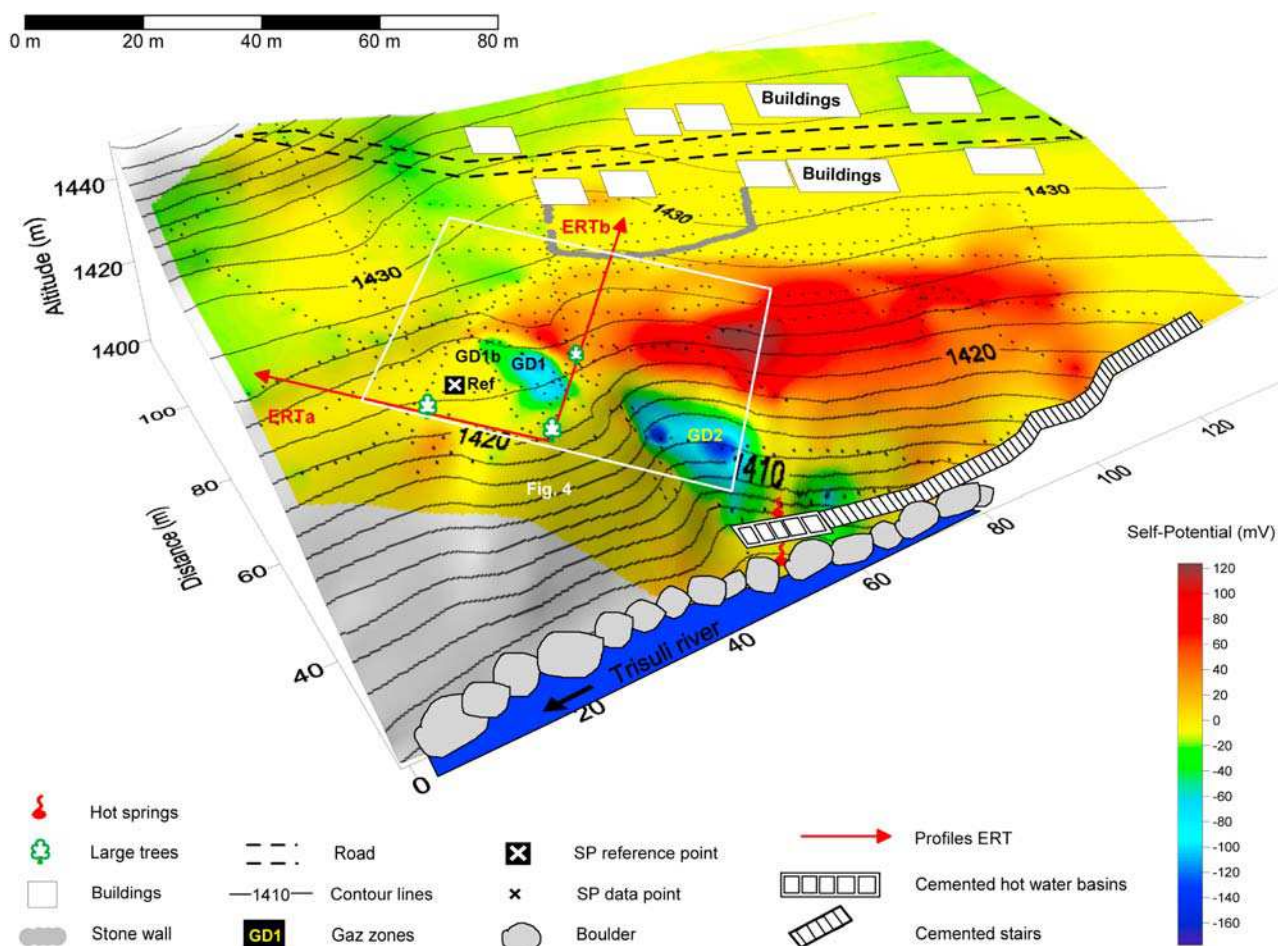


Figure 4. Self-potential map of the area around the hot springs, position of the electrical resistivity tomograms (ERTa and ERTb), and position of the main gas discharge areas (GD1, GD1b, and GD2). The cliffs, trees, terraces, and hot springs basins are shown for reference to Figure 2.

the self-potential anomaly coincides spectacularly with the maximum of CO₂ flux and with values of radon flux larger than $2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. This high gas flux is concentrated next to the foot of the hanging wall of a small ridge of about 2–3 m height. Significant CO₂ flux is also measured over the top of the hanging wall itself, associated with the positive self-potential anomaly. This behavior is best seen on the gas discharge GD1, for which most self-potential and gas flow measurements are available.

[20] The relationship between gas flow and self-potential is rather subtle, as illustrated in Figure 5 showing self-potential versus radon flux (Figure 5b) and self-potential versus CO₂ flux (Figure 5c). Whereas self-potential data display large dispersion in Figure 5b, radon fluxes larger than $1 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ are associated with negative self-potential values, smaller than -50 mV . A rough general trend for self-potential versus radon flux is shown by a black line representing a linear least squares fit. The relationship between self-potential and CO₂ is even more complex. Large values of the CO₂ flux, larger than $1 \text{ kg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$, can be associated with negative self-potential, as small as -150 mV , but also with positive values clustered around $+40 \text{ mV}$ and also around zero.

[21] To examine this complex relationship between self-potential and CO₂, Figure 6 compares three CO₂ profiles, the locations of which are shown in Figure 2, to the corresponding self-potential data interpolated from the self-potential map of Figure 5a. Profiles C1 and P2 are characterized by a negative self-potential at the flux maximum. The self-potential anomaly is narrower than the flux anomaly in C1 but it is larger in P2. Another case is profile C2, with the peak CO₂ flux associated with a positive step of self-potential instead of a peak.

[22] To understand the observed pattern, hints may be obtained from the resistivity structure. The ERTb tomogram crosses the gas discharge zone GD1 while the ERTa profile is perpendicular to ERTb and is located at the zone with similar topographic variations as ERTb but outside of the gas discharges (see Figure 4). Tomogram ERTa reveals the structure of the shallow subsurface in a local reference zone (Figure 7b), free of self-potential anomaly (Figure 7a) and free of gas flow (Figure 4). This profile shows that the upper part of the topography, namely, the terrace, is composed of a moderately resistive layer with resistivity varying from 300 to $1500 \Omega \text{ m}$. Below this resistive layer, we observe an homogeneous conductive zone with a mean resistivity of

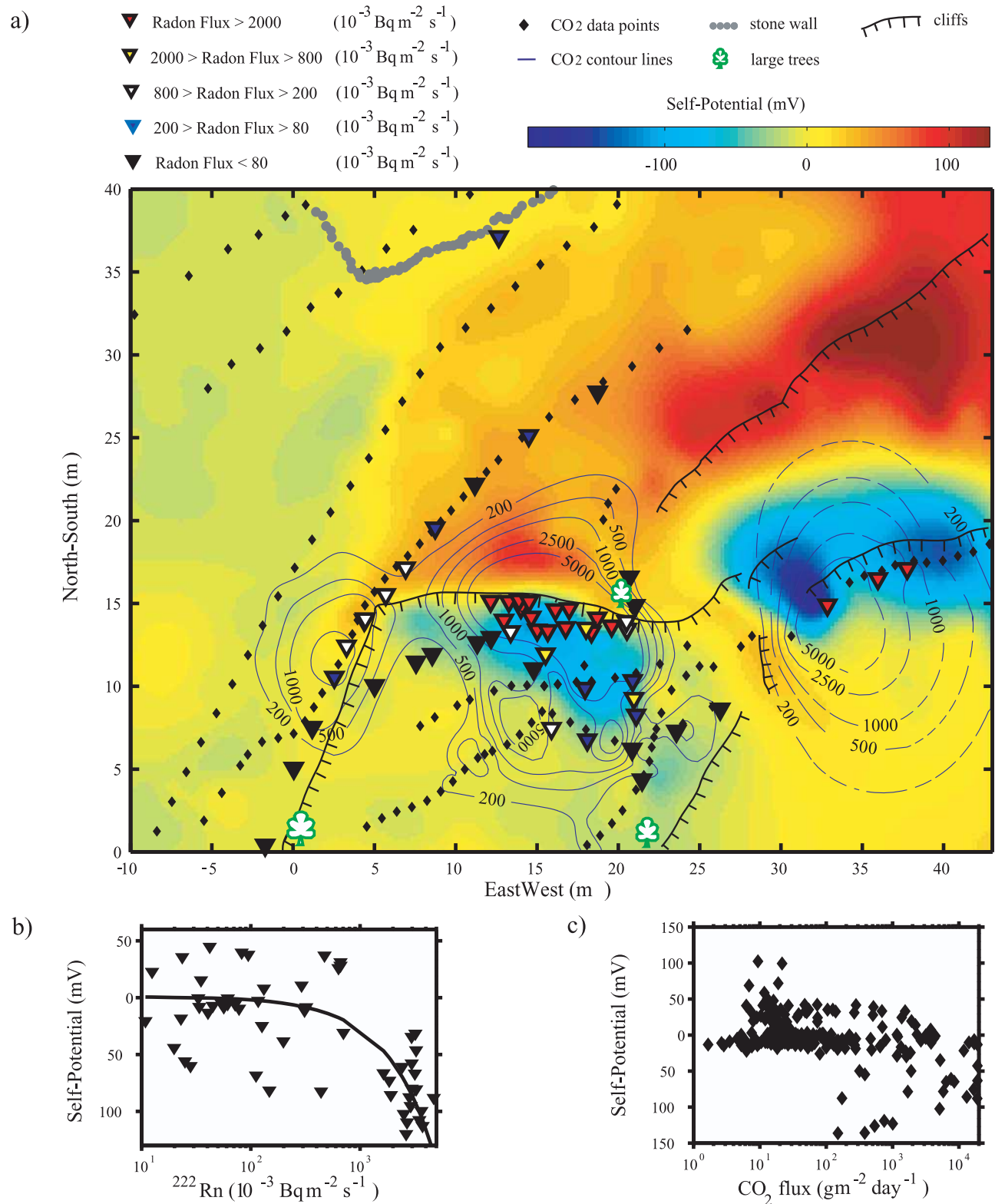


Figure 5. Details of the high-resolution survey (see position on Figure 4). (a) Self-potential map overlain with radon and CO₂ flux values. Diamonds denote the CO₂ flux values, and the filled triangles denote the ^{222}Rn flux stations with colors indicating the radon flux values. Blue lines contour CO₂ flux values, and dashed lines are used in areas less covered by the data. (b) Self-potential versus ^{222}Rn . The line corresponds to a least squares fit $\text{SP} [\text{mV}] = -0.05 \text{ Rn flux} [10^{-3} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}]$. (c) Self-potential versus CO₂ flux values.

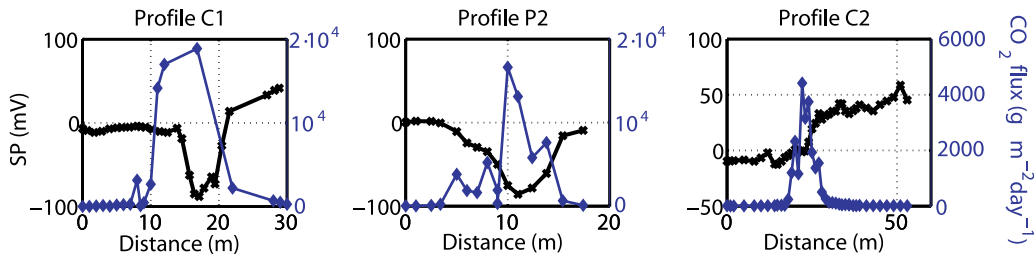


Figure 6. Self-potential and CO₂ flux along CO₂ profiles C1, P2, and C2 shown in Figure 2. Along profiles C1 and P2, crossing the main discharge zone GD1, the self-potential anticorrelates with CO₂ flux data. Along profile C2, passing on the terrace above the gas discharge zone GD1, the maximum of the CO₂ flux corresponds to a step in self-potential data and not to a minimum.

$\sim 50 \Omega \text{ m}$. Applying first Archie's law $\phi^m = \rho_w / \rho_r$, where $\rho_w = 5 \Omega \text{ m}$ is the resistivity of the spring water and $\rho_r = 50 \Omega \text{ m}$ is the resistivity of this layer, we obtain its porosity, around 22% by taking $m = 1.5$ or 36% with $m = 2$. Such high values of porosity are not realistic in this context, thus, this conductive body corresponds likely to a clay rich, water saturated alluvial layer. The resistive body, barely seen in the bottom of the ERT section, could represent a boulder (Figure 2). Boulders are indeed numerous near the Trisuli River bed, in a deep valley, with summits at more than 3000 m altitude a few kilometers away.

[23] A different structure is revealed by profile ERTb, oriented perpendicular to the dipolar self-potential anomaly (Figure 4). While the general features of ERTa are recognized in this case, this time the conductive body is crossed

by an oblique resistive channel with a resistivity of about 200–300 $\Omega \text{ m}$ and a width of about 4 m (Figures 7d and 8).

[24] The self-potential profile projected from the self-potential map on the ERTb line is shown in Figure 7c together with the CO₂ flux. The negative peak of the profile with amplitude of -80 mV coincides precisely with the maximum of the CO₂ flux, an extreme value of $19 \text{ kg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$, and with the top of the oblique resistive channel (Figure 7d). We therefore suggest to interpret the resistive channel as a preferential pathway for the gas and the hot hydrothermal water. Indeed, the presence of gas in a poorly consolidated material increases the resistivity of this material [Revil *et al.*, 1999]. Applying crudely the second Archie law $\rho(S_w) = \rho / S_w^2$ (where the $\rho(S_w) = 200 \Omega \text{ m}$ is the resistivity of the material at the relative water saturation S_w and $\rho = 50 \Omega$

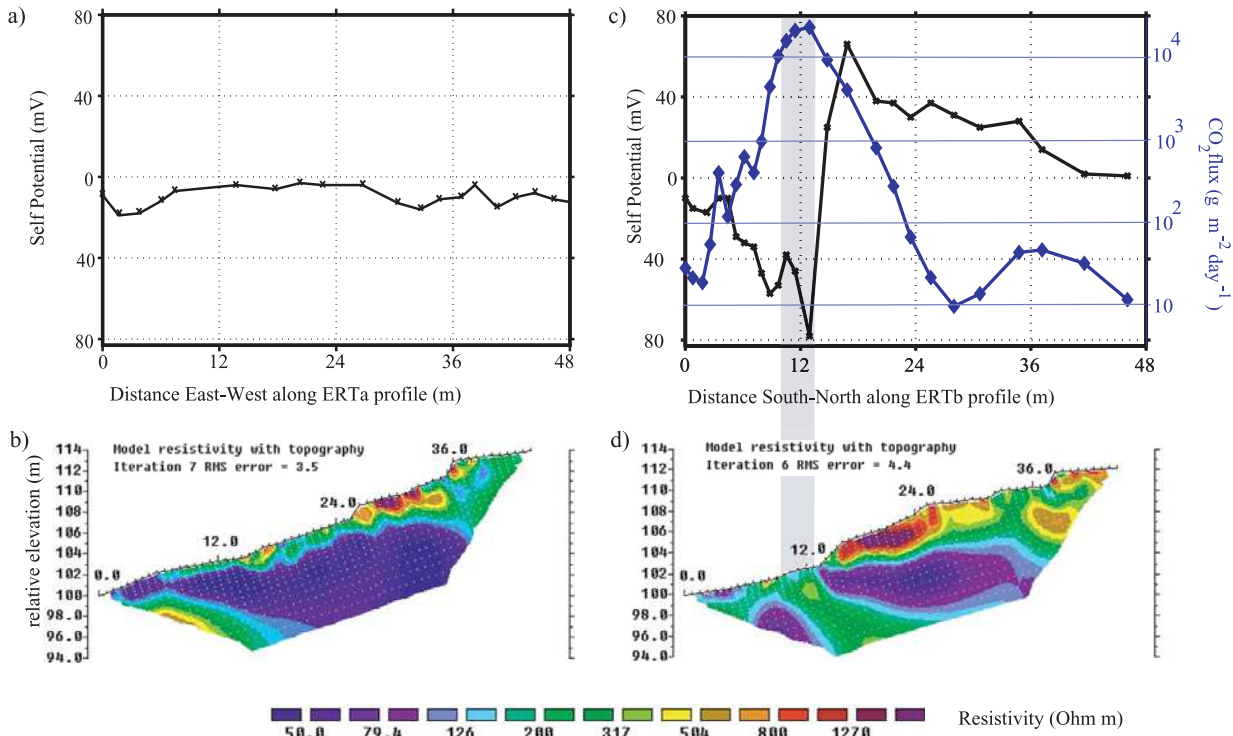


Figure 7. Electrical resistivity tomograms ERTa and ERTb and interpolated CO₂ flux and self-potential data. Zero point for both profiles is the reference tree. (a and b) Self-potential and resistivity tomogram along the ERTa profile. This profile is used as a reference located outside the degassing area. (c and d) Self-potential profile and interpolated CO₂ flux values along ERTb profile.

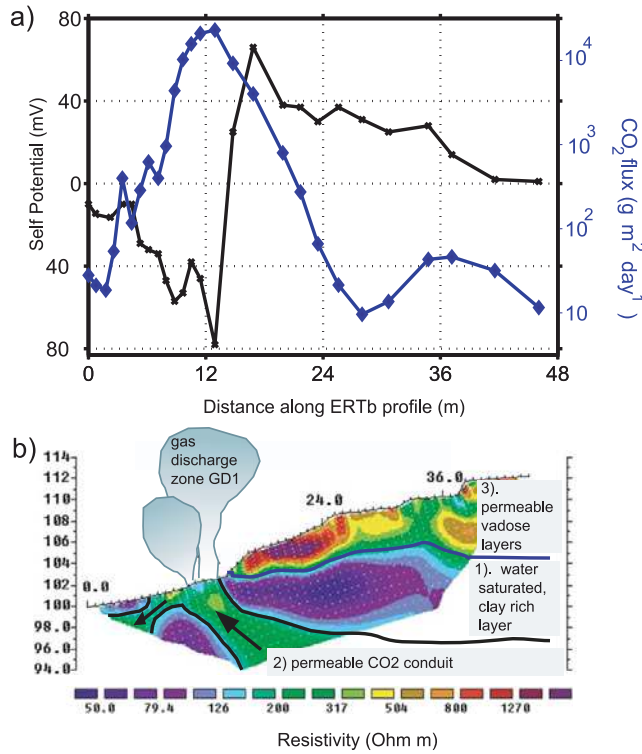


Figure 8. (a) Sketch of the plumbing system associated with the gas exhalations. (b) The ERT tomogram suggests the existence of three distinct zones: zone 1 is a water-saturated clayey soil layer (resistivity $50 \pm 10 \Omega \text{ m}$), zone 2 is a preferential pathway (resistivity in the range 200–300 $\Omega \text{ m}$), associated with high gas fluxes and negative self-potential anomaly at the ground surface, and zone 3 is a vadose zone (resistivity $>500 \Omega \text{ m}$). The CO₂ is released to the atmosphere, and the groundwater descends along the left part of the channel in the direction of the hot springs.

m is the resistivity of the rock at saturation), we obtain a mean water saturation inside the conduit that is equal to 0.50 (50% of the pore volume). Therefore, the upflow of the hot water seems to be mainly driven by the flow of the gas phase (Figure 8).

5. Modeling and Discussion

[25] In this section, we focus on the interpretation of the self-potential dipolar anomaly in the vicinity of the main gas zone GD1, best covered by self-potential, gas, and resistivity data. We propose here an interpretation of the self-potential anomalies in relation to the CO₂ flux anomalies and the resistivity tomograms. Because resistivity influences the distribution of the electrical equipotential lines, it is important to incorporate a reasonably accurate resistivity model inside any modeling of the self-potential response associated with the flow of the groundwater [Yasukawa *et al.*, 2003; Aizawa *et al.*, 2005; Uyeshima, 2007]. The accurate gas flux and resistivity data are available at the ERTb profile passing perpendicular to cliffs seen in Figure 2. Figure 2 shows that the cliffs appear as a boundary dividing the negative part of the self-potential anomaly, associated with a high gas fluxes, from the positive anomaly observed

on the terrace above the cliffs. Thus, we consider the 2-D approximation as a reasonable assumption to carry out our numerical model. We use the finite difference code SP50100I, which is a version of the SPXCPL software of Sill and Killpack [1982].

[26] We summarize now the partial differential equations solved by this code. The constitutive equation describing the flow of the pore water through a porous material is the Darcy equation,

$$\mathbf{u} = -K\nabla H, \quad (2)$$

where \mathbf{u} is the seepage velocity (in m s^{-1}) (Darcy velocity), H is the pressure head (in m), K is the hydraulic conductivity (in m s^{-1}). $K = k\rho_f g/\eta_f$, where k is the permeability (in m^2), ρ_f is the mass density (in kg m^{-3}), and η_f is the dynamic shear viscosity (in Pa s) of the pore water. For steady state conditions,

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = s, \quad (3)$$

where s is a volumetric source/sink term.

[27] The total electrical current density \mathbf{j} is given by a generalized Ohm law [Sill, 1983],

$$\mathbf{j} = -\sigma\nabla\varphi - L\nabla H, \quad (4)$$

where φ is the electrical (self-) potential (in V), σ is the electrical conductivity of the material, $\mathbf{j}_s = -L\nabla H$ is the source (streaming) current density, and L the streaming current coupling coefficient (in A m^{-2}). These equations are valid in the viscous laminar flow regime. An extension of this theory for water-saturated media in the inertial laminar flow regime has been available recently [Bolève *et al.*, 2007a; Crespy *et al.*, 2007]. This theory has also been extended recently to multiphase flow by Linde *et al.* [2007] and Revil *et al.* [2007].

[28] In the quasi-static limit of the Maxwell equations, the continuity equation for the electrical charge is

$$\nabla \cdot \mathbf{j} = 0, \quad (5)$$

and therefore the current density is conservative.

[29] If the fluid pressure term is expressed in the constitutive equations in terms of the hydraulic head, the streaming potential coupling coefficient is defined by

$$C \equiv \left\{ \frac{\partial\varphi}{\partial H} \right\}_{j=0} = -L/\sigma \quad (6)$$

and is expressed here in V m^{-1} . The streaming potential coupling coefficient is also often expressed in V Pa^{-1} if pressure is used as the state variable.

[30] The streaming potential coupling coefficient depends mainly on the electrical conductivity of the pore water [Revil *et al.*, 2003]. Perrier *et al.* [2002] report the results for their laboratory studies of the streaming potential coefficient of the rocks found along the MCT zone in Nepal. The values of the coupling coefficient vary from -1 to -8 mV m^{-1} ($-10 \times 10^{-8} \text{ V Pa}^{-1}$ to $-80 \times 10^{-8} \text{ V Pa}^{-1}$), which are reasonable values for an average electrolyte resistivity of 10–100 $\Omega \text{ m}$ [Perrier *et al.*, 2002]. A better

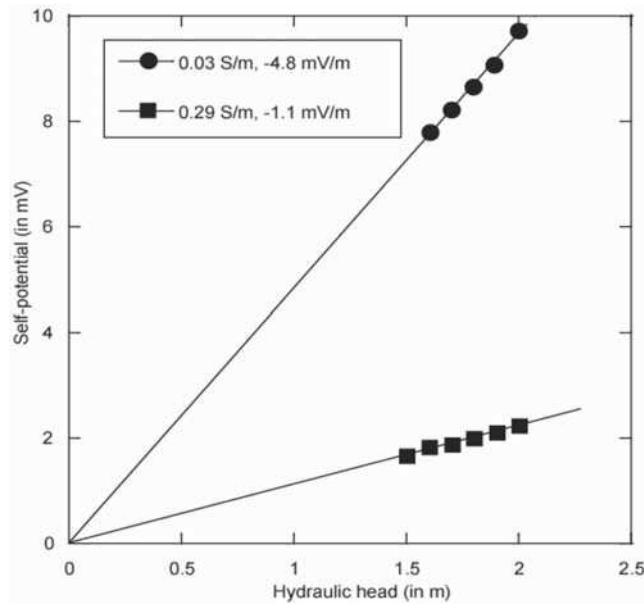


Figure 9. Measurement of the streaming potential coupling coefficient for a soil sample taken at $x = 12$ m in profile ERTb at two different pore water conductivities (0.03 and 0.29 S m⁻¹).

estimate can be obtained by looking at the composition of the Syabru-Bensi hot springs and by performing direct measurements of the streaming potential coupling coefficient on core samples.

[31] The composition of the Syabru-Bensi hot springs have been measured in January 2004. The temperature of the source is in the range 32 to 62°C. The pH is in the range 6.1 to 7.2. The electrical conductivity of the pore water is $\sigma_f = 0.17 \pm 0.03$ S m⁻¹. Measurements of the streaming coupling coefficient at two different pore water conductivities according to the method described by *Suski et al.* [2006] are shown in Figure 9 for one representative sample taken in the zone of maximum CO₂ flux. This soil sample contains clays and sulfate minerals from the alteration of black shale formation. The streaming potential coupling coefficient C for pore water conductivity of $\sigma_f = 0.17$ S m⁻¹ can be then approximated as $\sim -2.0 \pm 0.5$ mV m⁻¹ (-20×10^{-8} V Pa⁻¹). This value can be considered as the value of the streaming potential coefficient in the aquifer. On the basis of these results we can estimate the value of the coupling coefficient inside the conduit. According to *Revil et al.* [2007], the value of the streaming potential coupling coefficient $C(S_w)$ at saturation S_w , can be obtained approximately from the value of the streaming potential coupling coefficient at full saturation by $C(S_w) = CS_w$. Taking $C = -2$ mV m⁻¹ and $S_w = 0.50$, this yields a value of the coupling coefficient in the conduit of ~ -1 mV m⁻¹ ($\sim -10 \times 10^{-8}$ V Pa⁻¹).

[32] In the numerical modeling code SP50100I used for this study, the equations for hydraulic (equation (2)) and electric potentials (equation (4)) are solved sequentially. They are coupled by the source term in equation (4) calculated from the solution of equation (2). For both equations, boundary conditions have to be imposed. In the case of groundwater flow problem, we consider a no-flow boundary condition except at the bottom of the system (see

Figure 10). For the self-potential problem, we use an insulating boundary condition at the ground-air interface.

[33] The partial differential equation (PDE) solver solves first the groundwater flow equation. Then the solution is used to compute the source term of the Poisson equation for the self-potential. For the groundwater flow problem, we consider a no-flow boundary condition except at the bottom of the system (see Figure 10). For the self-potential problem, we use an insulating boundary condition at the ground-air interface.

[34] All models considered here include 100 horizontal cells by 50 vertical cells. The cell size is $x \times y = 0.7 \times 0.4$ m except for the bottom layer where the vertical size is set to 20 m. In order to avoid the influence of the model boundaries on the calculated self-potential, the mesh used for numerical modeling is larger than the original area of interest, defined by $A < x < D$ and $B < y < C$, respectively (Figure 10).

5.1. Model M1: Meteoric Water Circulation in Homogeneous Medium

[35] In a first model, we examine whether the observed self-potentials can be attributed solely to meteoric water flow along a topographic slope. All physical properties significant for the modeling (L , k and σ) are considered to be constant, e.g., all units have the same permeability. The meteoric water flowing owing to differences in topography encountered along the profile are supposed to be the only cause of the electrical current, no additional pressure sources are considered. The self-potential response for the M1 (green line in Figure 10c) shows an anticorrelation between the topography and the self-potential which have not been observed in our self-potential data. Furthermore, the M1 fails to account for the sign change at 12 m of the profile distance. This discrepancy between the results of the model M1 and the observed data have been anticipated from the field results obtained for the reference profile ERTa for which the approximations of the M1 seem realistic. Profile ERTa shows rather homogeneous resistivity distribution, gas flux measurements do not indicate any significant fluxes and no significant self-potential anomaly has been observed despite of the obvious topography.

5.2. Model M2: Meteoric Water Circulation in a Medium With a Permeable Channel

[36] In the next step, we introduce the permeable channel which existence can be concluded from our gas flux results. Model M2 contains a zone of higher permeability coinciding with a zone of 200 Ω 4 m resistivity layer. No additional pressure sources are introduced. M2 corresponds to an assumption that permeable zones of high gas fluxes offer

Table 2. Physical Properties Used in Models 1–3

	Unit	k (m ²)	C (mV m ⁻¹)	ρ (Ω m)
Model M1	1–4	10^{-15}	-2	50
Model M2	1, 3, 4	10^{-15}	-2	50
	2	2×10^{-13}	-1	200
Model M3	1	10^{-15}	-2	50
	2	2×10^{-13}	-1	200
	3	3×10^{-15}	-7	1200
	4	10^{-15}	-5	600

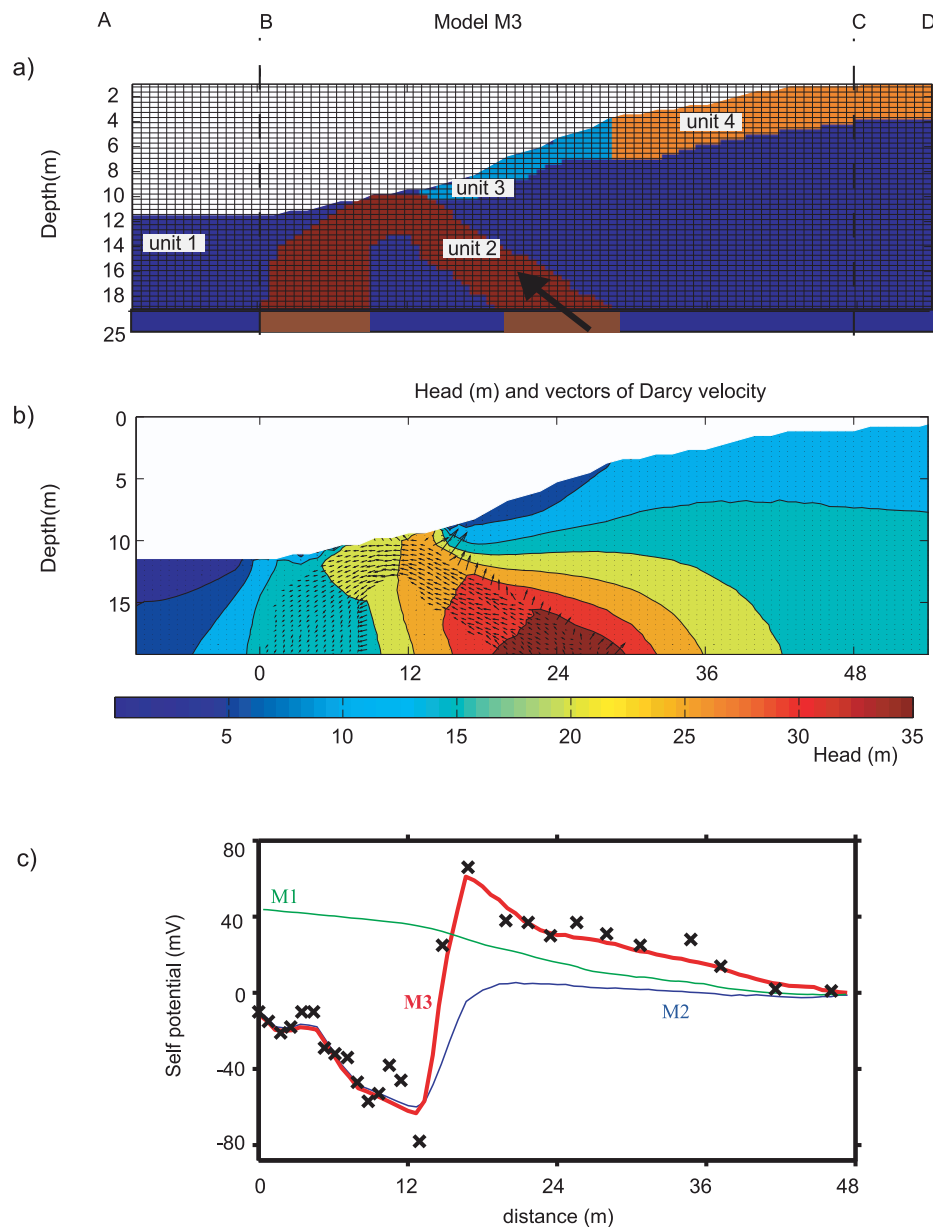


Figure 10. Numerical model M3. (a) The architecture of this model has four units with boundaries derived from the resistivity structure of the ERTb tomogram (located between points B and C). (b) Head distribution and Darcy velocity vectors calculated for the M3. (c) Self-potential data (crosses) and calculated SP response for models M1 (green line), M2 (blue line), and M3 (red line). Model M3 explains well the qualitative features of the observed self-potential data.

preferential pathways for the percolation of meteoric water. This model explains the minimum of the measured self-potential at 12 m profile distance but not the maximum at 24 m profile distance (blue line in Figure 10c).

5.3. Model M3: Convective Cell in a Medium With a Permeable Channel

[37] To model the upflow of the hydrothermal water, a pressure source with an amplitude of 4×10^5 Pa (which corresponds to 40 m in units of H) is introduced at the bottom of the model, at depth of 25 m. Both the amplitude and the depth of the source was chosen by trial and error to fit the observed self-potential data. This pressure source acts

in our model as a “surrogate” force replacing the unknown pressure distribution driving the ascent of CO₂ from the depth of few kilometers to the surface. The physical parameters of this model are reported in Table 2. With the characteristics listed in Table 2, the finite difference simulation, shown in Figure 10, agrees well with the observed self-potential data collection along profile ERTb (RMS = 6.2 mV).

[38] In M3 the Darcy velocity in unit 2 is 10^{-4} m s⁻¹ which corresponds by a saturation of 50% to the CO₂ flux $7.5 \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. This value fits nicely to the average CO₂ flux value above the top permeable channel (marked by grey rectangle in Figures 7c and 7d). While our proposed

solution cannot be proven to be unique, alternative interpretations with other flow geometries are not easy to find because of the constraints given by the resistivity and self-potential and gas flux data together with a position of the gas discharges.

6. Conclusions

[39] A high-resolution self-potential map has been obtained at the main gas discharge points and hot springs located in a major fault zone in central Nepal. This map reveals two clear dipolar self-potential anomalies with an amplitude of several hundreds of millivolts. An electrical resistivity tomogram indicates a dipping 200 Ω m resistive structure, the top of which coincides with the main gas discharge and with the negative peak of the self-potential anomaly. Our interpretation is that the resistive structure represents a permeable fracture zone serving as a preferential pathway for the flow of gas and water. The presence of gas decreases the conductivity with respect to the host material. This structure is surrounded at the depth of several meters by a conductive medium (50 Ω m) and by a high-resistivity (600–1200 Ω m) overburden close to the surface on the northern part of the profile. To explain the observed self-potential anomaly, we assume that the fluid flow is ascending along the 200 Ω m permeable pathway and to account for the negative pole, we introduce a descending flow to the south of the profile, in the direction of the hot springs.

[40] This model offers a good representation of the self-potential data using values of the coupling parameters that have been determined independently. Nevertheless, the estimate of the numerical parameters of the model is not unique and the magnitude of the pressure source is not known a priori. In addition, the model does not account for all the observed physical properties of the system, such as the details of the relationship between self-potential and CO₂ flux. In this context, the 2-D assumption is surely a strong approximation. Despite these limitations, thanks to the constraints given by the electrical resistivity tomogram, self-potential and flux data, the flow configuration is well constrained and remains the most robust result of our study. For the development of the conceptual model and the parameterization for the simulation, the knowledge of the resistivity structure was of utmost importance.

[41] This study provides an example of a self-potential spatial distribution interpreted in the context of heterogeneous electrical properties. In addition, it provides an example of a dipolar self-potential anomaly interpreted as a upward-downward flow pair, the former driven by vigorous gas ascent, the latter by topography. This flow configuration may be a general feature of geothermal systems with large gas release.

[42] To evaluate the physical processes, it may be important to assess the temporal variations of the self-potentials in Syabru-Bensi. This could be crucial to identify possible components associated with meteorological effects, in particular rainfall or shallow ground water table variations, for example, associated with seasonal effects like monsoon. Additional mechanisms, for example, associated with gradients of concentrations or temperature, could also contrib-

ute to the observed self-potentials. To make progress on the interpretation, it may also be interesting to consider a comparative modeling approach of the few known dipolar self-potential anomalies. To assess the general versus particular features of the self-potentials observed in Syabru-Bensi, self-potential mapping should also be performed in other similar geothermal sites in central Nepal. These sites offer excellent opportunities for testing in details our understanding of hydroelectrical coupling, and the contribution of two-phase fluid flow. These geothermal systems are also particularly interesting because the fluid variations at the origin of the observed effects may be sensitive to forcing factors such as stress variations.

[43] **Acknowledgments.** The authors thank the Central Department of Geology, Tribhuvan University Kathmandu, Nepal, for providing equipment for the ERT survey; D. K. Butler (U.S. Army Engineer Waterways Experiment Station, Mississippi) and V. Rath (Aachen University, Germany) for making the code SP501001 for the self-potential modeling available to us; the Department of Mines and Geology for his support; and R. Raut for assistance during the field work. We thank the reviewers for their constructive contributions to our manuscript. This paper is IPGP contribution 2526.

References

- Aizawa, K., et al. (2005), Hydrothermal system beneath Mt. Fuji volcano inferred from magnetotellurics and electric self-potential, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **235**, 343–355, doi:10.1016/j.epsl.2005.03.023.
- Apostolopoulos, G., I. Louis, and E. Lagios (1997), The self-potential method in the geothermal exploration of Greece, *Geophysics*, **62**(6), 1715–1723, doi:10.1190/1.1444271.
- Becker, J., M. Bickle, A. Galy, and T. Holland (2008), Himalayan metamorphic CO₂ fluxes: quantitative constraints from hydrothermal springs, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **265**, 616–629, doi:10.1016/j.epsl.2007.10.046.
- Bolève, A., A. Crespy, A. Revil, F. Janod, and J. L. Mattiuzzo (2007a), Streaming potentials of granular media: Influence of the Dukhin and Reynolds numbers, *J. Geophys. Res.*, **112**, B08204, doi:10.1029/2006JB004673.
- Bolève, A., A. Revil, F. Janod, J. L. Mattiuzzo, and A. Jardani (2007b), Forward modeling and validation of a new formulation to compute self-potential signals associated with ground water flow, *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, **11**, 1661–1671.
- Bollhöfer, A., J. Storm, P. Martin, and S. Tims (2006), Geographic variability in radon exhalation at a rehabilitated uranium mine in the Northern Territory, Australia, *Environ. Monit. Assess.*, **114**, 313–330, doi:10.1007/s10661-006-4777-z.
- Bollinger, L., J. P. Avouac, R. Cattin, and M. R. Pandey (2004), Stress buildup in the Himalaya, *J. Geophys. Res.*, **109**, B11405, doi:10.1029/2003JB002911.
- Bollinger, L., P. Henry, and J. Avouac (2006), Mountain building in the Nepal Himalaya: Thermal and kinematic model, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **244**, 58–71, doi:10.1016/j.epsl.2006.01.045.
- Castermant, J., C. Mendonca, A. Revil, F. Trolard, G. Bourrie, and N. Linde (2008), Redox potential distribution inferred from self-potential measurements during the corrosion of a burden metallic body, *Geophys. Prospect.*, **56**, 269–282, doi:10.1111/j.1365-2478.2007.00675.x.
- Constable, S., R. Parker, and C. Constable (1987), Occam inversion: a practical algorithm for generating smooth models from electromagnetic sounding data, *Geophysics*, **52**, 289–300, doi:10.1190/1.1442303.
- Corwin, R., and D. Hoover (1979), The self-potential method in geothermal exploration, *Geophysics*, **44**(2), 226–242, doi:10.1190/1.1440964.
- Corwin, R. F., and D. V. Fitterman (1982), Geological interpretation of self-potential data from the Cerro Prieto geothermal field, *Geophysics*, **47**(6), 938–945, doi:10.1190/1.1441361.
- Crespy, A., A. Boleve, and A. Revil (2007), Influence of the Dukhin and Reynolds numbers on the apparent zeta potential of granular media, *J. Colloid Interface Sci.*, **305**, 188–194, doi:10.1016/j.jcis.2006.09.038.
- Crespy, A., A. Revil, N. Linde, S. Byrdina, A. Jardani, A. Boleve, and P. Henry (2008), Detection and localization of hydromechanical disturbances in a sandbox using the self-potential method, *J. Geophys. Res.*, **113**, B01205, doi:10.1029/2007JB005042.
- Darnet, M., A. Maineult, and G. Marquis (2004), On the origins of self-potential (SP) anomalies induced by water injections into geothermal reservoirs, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L19609, doi:10.1029/2004GL020922.

- Evans, M. J., L. A. Derry, and C. France-Lanord (2004), Geothermal fluxes of alkalinity in the Narayani river system of central Nepal, *Geochim. Geophys. Geosyst.*, 5, Q08011, doi:10.1029/2004GC000719.
- Evans, M. J., L. A. Derry, and C. France-Lanord (2008), Degassing of metamorphic carbon dioxide from the Nepal Himalaya, *Geochim. Geophys. Geosyst.*, 9, Q04021, doi:10.1029/2007GC001796.
- Finizola, A., F. Sortino, J. Lenat, M. Aubert, M. Ripepe, and M. Valenza (2003), The summit hydrothermal system of Stromboli. New insights from self-potential, temperature, CO₂ and fumarolic fluid measurements with structural and monitoring implications, *Bull. Volcanol.*, 65, 486–504, doi:10.1007/s00445-003-0276-z.
- Finizola, A., J.-F. Lenat, O. Macedo, D. Ramos, J. Thouret, and F. Sortino (2004), Fluid circulation and structural discontinuities inside Misti volcano (Peru) inferred from self-potential measurements, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 135, 343–360, doi:10.1016/j.jvolgeores.2004.03.009.
- Finizola, A., A. Revil, E. Rizzo, S. Piscitelli, T. Ricci, J. Morin, B. Angeletti, L. Mocochain, and F. Sortino (2006), Hydrogeological insights at Stromboli volcano (Italy) from geoelectrical, temperature, and CO₂ soil degassing investigations, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17304, doi:10.1029/2006GL026842.
- Goldstein, N. E., S. Halfma, R. F. Convint, and J. R. Alvarez (1989), Self-potential anomaly changes at the East Mesa and Cerro Prieto geothermal fields, paper presented at 14th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering, Stanford Univ., Stanford, Calif.
- Ishido, T., and J. W. Pritchett (1999), Numerical simulation of electrokinetic potentials associated with subsurface fluid flow, *J. Geophys. Res.*, 104(B7), 15,247–15,259, doi:10.1029/1999JB900093.
- Ishido, T., T. Kikuchi, N. Matsushima, Y. Yano, S. Nakao, M. Sugihara, T. Tosha, S. Takakura, and Y. Ogawa (1997), Repeated self-potential profiling of Izu-Oshima volcano, Japan, *J. Geomagn. Geoelectr.*, 49, 1267–1278.
- Jardani, A., J. P. Dupont, and A. Revil (2006), Self-potential signals associated with preferential groundwater flow pathways in sinkholes, *J. Geophys. Res.*, 111, B09204, doi:10.1029/2005JB004231.
- Jardani, A., A. Revil, A. Bolève, and J. P. Dupont (2008), Three-dimensional inversion of self-potential data used to constrain the pattern of groundwater flow in geothermal fields, *J. Geophys. Res.*, 113, B09204, doi:10.1029/2007JB005302.
- Lavé, J., D. Yule, S. Sapkota, K. Basant, C. Madden, M. Attal, and R. Pandey (2005), Evidence for a Great Medieval Earthquake (~1100 A.D.) in the Central Himalayas of Nepal, *Science*, 307, 1302–1305, doi:10.1126/science.1104804.
- Lénat, J. F., B. Robineau, S. Durand, and P. Bachelery (1998), A self-potential survey of the summit zone of Karthala volcano (Grande Comore), *C. R. Acad. Sci., Ser. II*, 327, 781–788.
- Lewicki, J. L., C. Connor, K. St-Amand, J. Stix, and W. Spinner (2003), Self-potential, soil CO₂ flux, and temperature on Masaya volcano, Nicaragua, *Geophys. Res. Lett.*, 30(15), 1817, doi:10.1029/2003GL017731.
- Linde, N., D. Jougnot, A. Revil, S. K. Matthai, T. Arora, D. Renard, and C. Doussan (2007), Streaming current generation in two-phase flow conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L03306, doi:10.1029/2006GL028878.
- Loke, M., and R. D. Barker (1996), Rapid least-squares inversion of apparent resistivity pseudosections by a quasi-Newton method, *Geophys. Prospect.*, 44, 131–152, doi:10.1111/j.1365-2478.1996.tb00142.x.
- Maineult, A., M. Darnet, and G. Marquis (2006), Correction to “On the origins of self-potential (SP) anomalies induced by water injections into geothermal reservoirs”, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L20319, doi:10.1029/2006GL028211.
- Minsley, B. J., J. Sogade, and F. Morgan (2007), Three-dimensional self-potential inversion for subsurface DNAPL contaminant detection at the Savannah River Site, South Carolina, *Water Resour. Res.*, 43, W04429, doi:10.1029/2005WR003996.
- Naudet, V., A. Revil, J.-Y. Bottero, and P. Begassat (2003), Relationship between self-potential (SP) signals and redox conditions in contaminated groundwater, *Geophys. Res. Lett.*, 30(21), 2091, doi:10.1029/2003GL018096.
- Nourbehecht, B. (1963), Irreversible thermodynamic effects in inhomogeneous media and their application in certain geoelectric problems, Ph.D. thesis, Mass. Inst. Technol., Cambridge.
- Olayinka, A. I., and U. Yaramanci (2000), Use of block inversion in the 2-D interpretation of apparent resistivity data and its comparison with smooth inversion, *J. Appl. Geophys.*, 45(2), 63–81, doi:10.1016/S0926-9851(00)00019-7.
- Pandey, M., R. Tandukar, J. Avouac, J. Vergne, and T. Heritier (1999), Seismotectonics of the Nepal Himalaya from a local seismic network, *J. Asian Earth Sci.*, 17, 703–712, doi:10.1016/S1367-9120(99)00034-6.
- Park, S., W. Dalrymple, and J. C. Larsen (2007), Parkfield earthquake: Test of the electromagnetic precursor hypothesis, *J. Geophys. Res.*, 112, B05302, doi:10.1029/2005JB004196.
- Perrier, F., G. Chitrakar, T. Froidefond, D. Tiwari, U. Gautam, B. Kafle, and M. Trique (2002), Estimating streaming potentials associated with geothermal circulation at the Main Central Thrust: An example from Tatopani-Kodari hot spring in central Nepal, *J. Nepal Geol. Soc.*, 26, 17–27.
- Perrier, F., et al. (2009), High carbon dioxide and radon-222 gas exhalation at the Syabru-Bensi hot springs in central Nepal, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 278, 198–207, doi:10.1016/j.epsl.2008.12.008.
- Petiau, G. (2000), Second generation of lead-lead chloride electrodes for geophysical applications, *Pure Appl. Geophys.*, 157, 357–382, doi:10.1007/s000240050004.
- Revil, A., and L. M. Cathles (2002a), Fluid transport by solitary waves along growing faults: A field example from the South Eugene Island Basin, Gulf of Mexico, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 204(1–2), 321–335, doi:10.1016/S0012-821X(02)01001-4.
- Revil, A., and L. M. Cathles (2002b), Fluid transport by solitary waves along growing faults: A field example from the South Eugene Island Basin, Gulf of Mexico, (erratum), *Earth Planet. Sci. Lett.*, 204(1–2), 321–322, doi:10.1016/S0012-821X(02)01001-4.
- Revil, A., and P. A. Pezard (1998), Streaming electrical potential anomaly along faults in geothermal areas, *Geophys. Res. Lett.*, 25(16), 3197–3200, doi:10.1029/98GL02384.
- Revil, A., P. A. Pezard, and P. W. J. Glover (1999), Streaming potential in porous media: 1. Theory of the zeta potential, *J. Geophys. Res.*, 104, 20,021–20,031, doi:10.1029/1999JB900089.
- Revil, A., V. Naudet, J. Nouzaret, and M. Pessel (2003), Principles of electrography applied to self-potential electrokinetic sources and hydrogeological applications, *Water Resour. Res.*, 39(5), 1114, doi:10.1029/2001WR000916.
- Revil, A., A. Finizola, F. Sortino, and M. Ripepe (2004), Geophysical investigations at Stromboli volcano, Italy. Implications for ground water flow and paroxysmal activity, *Geophys. J. Int.*, 157(1), 426–440, doi:10.1111/j.1365-246X.2004.02181.x.
- Revil, A., Q. Fan, L. Cary, A. Finizola, and F. Trolard (2005), Negative self-potential signals associated with preferential ground water flow pathways in a buried paleo-channel, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L07401, doi:10.1029/2004GL022124.
- Revil, A., N. Linde, A. Cerepi, D. Jougnot, S. Matthai, and S. Finsterle (2007), Electrokinetic coupling in unsaturated porous media, *J. Colloid Interface Sci.*, 313, 315–327, doi:10.1016/j.jcis.2007.03.037.
- Revil, A., et al. (2008), Inner structure of La Fossa di Vulcano (Vulcano Island, southern Tyrrhenian Sea, Italy) revealed by high resolution electric resistivity tomography coupled with self-potential, temperature, and soil CO₂ diffuse degassing measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, B07207, doi:10.1029/2007JB005394.
- Sandwell, D. T. (1987), Biharmonic spline interpolation of GEOS-3 and SEASAT altimeter data, *Geophys. Res. Lett.*, 14(2), 139–142, doi:10.1029/GL014i002p00139.
- Sasai, Y., J. Zlotnicki, Y. Nishida, Y. Tanaka, P. Yvetot, P. Morat, and H. Murakami (1997), Electromagnetic monitoring of Miyake-jima Volcano, Izu-Bonin Arc, Japan: A preliminary report, *J. Geomagn. Geoelectr.*, 49, 1293–1316.
- Schima, S., M. Wilt, and H. Ross (1995), Modeling self-potential data in the Abraham and Meadow-Hatton hydrothermal systems: The search of upflow zones, paper presented at Annual Meeting of the Geotherm. Resour. Council, Reno, Nev., 8–11 Oct.
- Sill, W., and T. Killpack (1982), SPXCL: Two-dimensional modeling program of self-potential effects from cross-coupled fluid and heat flow, user's guide and documentation for version 1.0, *NASA STI/Recon Tech. Rep.*, 83, 13,400.
- Sill, W. R. (1983), Self-potential modeling from primary flows, *Geophysics*, 48(1), 76–86, doi:10.1190/1.1441409.
- Suski, B., A. Revil, K. Titov, P. Konosavsky, M. Voltz, C. Dages, and O. Huttel (2006), Monitoring of an infiltration experiment using the self-potential method, *Water Resour. Res.*, 42, W08418, doi:10.1029/2005WR004840.
- Upreti, B. (1999), An overview of the stratigraphy and tectonics of the Nepal Himalaya, *J. Asian Earth Sci.*, 17, 577–606, doi:10.1016/S1367-9120(99)00047-4.
- Uyeshima, M. (2007), EM monitoring of Crustal Processes Including the Use of the Network-MT observations, *Surv. Geophys.*, 28, 199–237, doi:10.1007/s10712-007-9023-x.
- Ward, S. (1989), Resistivity and induced polarization methods, in *Geotechnical and Environmental Geophysics, Invest. Geophys.*, vol. 5, edited by S. Ward, pp. 147–189, Soc. of Explor. Geophys., Tulsa, Okla.
- Wilkinson, P., J. Chambers, P. I. Meldrum, R. D. Ogilvy, C. J. Mellor, and S. Caunt (2005), A comparison of self-potential tomography with elec-

- trical resistivity tomography for the detection of abandoned mineshafts, *J. Environ. Eng. Geophys.*, 10(4), 381–389, doi:10.2113/JEEG10.4.381.
- Yasukawa, K., G. Bodvarsson, and M. Wilt (1993), A coupled self-potential and mass-heat flow code for geothermal applications, *Trans. Geotherm. Resour. Counc.*, 17, 203–207.
- Yasukawa, K., T. Mogi, D. Widarto, and S. Ehara (2003), Numerical modeling of a hydrothermal system around Waita volcano, Kyushu, Japan, based on resistivity and self-potential survey results, *Geothermics*, 32, 21–46, doi:10.1016/S0375-6505(02)00048-2.
- Zlotnicki, J., and Y. Nishida (2003), Review on morphological insights of self-potential anomalies on volcanoes, *Surv. Geophys.*, 24, 291–338, doi:10.1023/B:GEOP.00000004188.67923.ac.
- S. Byrdina, Laboratoire Magmas et Volcans Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal, IRD M163, UMR 6524, 5 rue Kessler, F-63038 Clermont-Ferrand, France. (S.Byrdina@opgc.univbpclermont.fr)
- S. Contraires, Equipe de Géomatériaux et Environnement, IPGP, UMR 7154, 4, Place Jussieu, F-75005 Paris, France.
- U. P. Gautam, B. P. Koirala, S. N. Sapkota, P. L. Shrestha, and D. R. Tiwari, National Seismological Centre, Department of Mines and Geology, Lainchaur, Kathmandu, Nepal.
- S. R. Pant and K. Shrestha, Central Department of Geology, Tribhuvan University, Kirtipur, Nepal.
- F. Perrier, Université Paris Diderot, IPGP, UMR 7154, 4, Place Jussieu, F-75005 Paris, France.
- A. Revil, Colorado School of Mines, Green Center, Department of Geophysics, 1500 Illinois Street, Golden, CO, USA. (arevil@mines.edu)
-
- S. Byrdina, Laboratoire Magmas et Volcans Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal, IRD M163, UMR